



TESIS - SF142502

**ANALISIS STRUKTUR GRAFENA OKSIDA TEREDUKSI DARI TEMPURUNG
KELAPA TUA DENGAN HAMBURAN SINAR-X SUDUT KECIL SINKROTRON
(SAXS)**

ANANDA YOGI NUGRAHENI

NRP 1115 201 010

DOSEN PEMBIMBING

Prof. Darminto, M.Sc.

PROGRAM MAGISTER

BIDANG KEAHLIAN FISIKA MATERIAL

PROGRAM STUDI FISIKA

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM

INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER

SURABAYA

2017



TESIS - SF142501

**STRUCTURAL ANALYSIS OF REDUCED GRAPHENE OXIDE (rGO) FROM
OLD COCONUT SHELL BY SMALL ANGLE X-RAY SCATTERING (SAXS)**

ANANDA YOGI NUGRAHENI

NRP 1115 201 010

SUPERVISOR

Prof. Darminto, M.Sc.

MAGISTER

MATERIAL SCIENCE OF PHYSICS

PHYSICS DEPARTMENT

FACULTY OF MATHEMATICS AND NATURAL SCIENCE

INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER

SURABAYA

2017

LEMBAR PENGESAHAN

Tesis disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar
Magister Sains (M.Si)
di
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

oleh :
Ananda Yogi Nugraheni
NRP. 1115 201 010

Tanggal Ujian : 5 Januari 2017
Periode Wisuda : Maret 2017

Disetujui oleh :

1. Prof. Darminto, M.Sc.
NIP. 19600303 198701 1 002

Pembimbing

()

2. Prof. Suminar Pratapa, PhD
NIP. 19660224 199002.1.001

Penguji

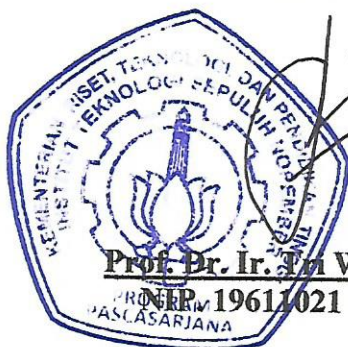
()

3. Dr. Muhammad Zainuri, M.Si
NIP. 19640130 199002.1.001

Penguji

()

a/n. Direktur Program Pascasarjana,
Asisten Direktur



Prof. Dr. Ir. Tri Widjaja, M.Eng.
NIP. 19611021 198603 1 001

“Halaman ini sengaja dikosongkan”



ANALISIS STRUKTUR GRAFENA OKSIDA TEREDUKSI DARI TEMPURUNG KELAPA TUA DENGAN HAMBURAN SINAR-X SUDUT KECIL SINKROTRON (SAXS)

Nama : Ananda Yogi Nugraheni
NRP : 1115201010
Jurusan : Fisika, FMIPA-ITS
Pembimbing : Prof. Dr. Darminto, M.Sc

ABSTRAK

Penelitian berjudul “ Analisis Struktur Grafena Oksida Tereeduksi dari Tempurung Kelapa Tua dengan Hamburan Sinar-X Sudut Kecil Sinkrotron (SAXS) “ telah dilakukan dengan memanfaatkan bahan dasar limbah tempurung kelapa tua sebagai bahan pembentukan rGO. Penelitian ini menggunakan metode pencampuran serbuk arang dengan zat asam menggunakan HCL dan proses penyayatan. Variasi yang digunakan adalah perbandingan konsentrasi larutan (0,1M dan 1M) serta waktu penyayatan selama 3 dan 6 jam. Karakterisasi dilakukan dengan menggunakan pengujian XRD, PSA, FTIR dan SAXS. Hasil analisis XRD menunjukkan bahwa terbentuk fasa rGO pada posisi sudut $2\theta = 23^\circ$ dengan bidang (002) dan tereduksinya ukuran partikel pada bidang (100) yang ditandai dengan berkurangnya intensitas puncak pada posisi sudut $2\theta = 43^\circ$. Hasil analisis PSA menunjukkan bahwa penggunaan proses pencampuran senyawa HCL dalam larutan rGO dari arang tempurung kelapa dapat mereduksi ukuran partikel sehingga muncul beberapa puncak di daerah kurang dari 10, 100 nm dan lebih dari 1μ . Hasil analisis FTIR menunjukkan bahwa telah tersisipnya atom - atom Cl pada ikatan antar lapisan rGO sehingga dapat mereduksi ukuran partikel, yang ditandai dengan munculnya puncak untuk ikatan C-Cl pada bilangan gelombang sekitar 423cm^{-1} . Hasil analisis SAXS menggunakan model Guinier dan BeaucageExPoLaw menunjukkan bahwa partikel dalam larutan memiliki radius dibawah 10 nm dengan radius yang beragam karena dispersitas yang rendah serta hasil pencocokan menunjukkan bentuk partikel secara garis besar berbentuk bongkahan bola kasar. Hamburan x-ray yang dihasilkan memiliki intensitas yang sangat rendah disebabkan oleh konsentrasi partikel dalam larutan yang rendah.

Kata Kunci : grafena oksida tereduksi (rGO), ukuran partikel, tebal lapisan rGO, SAXS

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

STRUCTURAL ANALYSIS OF REDUCED GRAPHENE OXIDE (rGO) FROM OLD COCONUT SHELL BY SMALL ANGLE X-RAY SCATTERING (SAXS)

Nama : Ananda Yogi Nugraheni
NRP : 1115201010
Jurusan : Fisika, FMIPA-ITS
Pembimbing : Prof. Dr. Darminto, M.Sc

ABSTRACT

Structural Analysis of Reduced Graphene Oxide (rGO) from Old Coconut Shell by Small Angle X-Ray Scattering (SAXS) has been carried out by utilizing coconut shell. The purpose of this work is to obtain the thickness layer of rGO by using mixing method between charcoal powder with HCL in different molarity and exfoliation time variation. Molarity variation that used were 0,1M and 1M also exfoliation time for 3 and 6 hours. Characterization was performed using XRD, PSA, FTIR and SAXS. XRD analysis shows that the reduced graphene oxide phase is formed with broad peak at $2\theta = 23^\circ$ at (002) and low intensity peak at $2\theta = 43^\circ$ due to the decreasing of particle size at (100) plane. PSA analysis shows that mixing method using HCL and exfoliation process in solution has reduced the thickness layer of rGO which appear at some peaks below 10 and 100 nm also more than 1μ . FTIR result shows that Cl atom has been substituted on Van der Waals bond between layer that cause reduction thickness of rGO which marked by the appearance of C-Cl bond peak at 423cm^{-1} . SAXS analysis using Guinier and BeaucageExPolaw model shows that particles in solution consist of particle with radii below 10 nm and consist of various sizes that are not homogeneous. Fitting curve shows that the form factor of particles are spherical particles with mass fractal. Small particles seen in high q range which were aggregate to form the big particles that appear in low q range. X-ray scattering of the sample has a very low intensity due to the low concentration of particle in solution.

Key Words : reduced graphene oxide (rGO), particle size, thickness of rGO, SAXS

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan kepada Allah SWT atas segala limpahan rahmat berkah, rahmat, dan petunjukNya atas nikmat iman, islam, dan ikhsan yang diberikan kepada penulis sehingga dapat menyelesaikan laporan Thesis ini dengan optimal dan tepat waktu. Sholawat serta salam senantiasa tercurahkan kepada Rasulullah, Nabi Muhammad SAW yang telah menuntun kami dari kebodohan menuju cahaya kebenaran.

Thesis ini penulis susun untuk memenuhi persyaratan menyelesaikan pendidikan magister (S2) di Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya. Thesis ini ditulis dengan judul :

“Analisis Struktur Grafena Oksida Tereduksi dari tempurung Kelapa Tua dengan Hamburan Sinar-X Sudut Kecil Sinkrotron (SAXS)”

Penulis persembahkan kepada masyarakat Indonesia guna berpartisipasi untuk mengembangkan ilmu pengetahuan dalam bidang sains dan teknologi.

Penulis mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada pihak-pihak yang membantu penyusunan laporan Thesis dan proses penelitiannya.

1. Kedua orang tua tercinta. Ibu Siti Fatmiati dan Bapak Sugiyarto yang telah memberikan semua hal terbaik bagi penulis sejak kecil sampai dewasa.
2. Bapak Prof. Dr. Darminto, M.Sc selaku dosen pembimbing yang telah membagi pengalaman serta memberikan pengarahan selama proses penelitian dan penyusunan laporan.
3. Dr. Siritat S. dan Dr. Nunthaporn K. selaku pembimbing dari Synchrotron Light Research Institute (SLRI) Thailand atas kerjasama penelitian dan bimbingannya dalam pengambilan data menggunakan Small Angle X-Ray Scattering (SAXS)
4. Bapak Dr. Edi Giri R.P selaku pembimbing dari BATAN yang telah membagi ilmu dan pengalamannya dalam menganalisis struktur menggunakan SAXS
5. Bapak Dr. Ahmad Taufiq dan Bapak Dr. Sunaryono selaku pembimbing dari Universitas Negeri Malang yang telah membagi ilmu dan pengalamannya dalam

mengolah dan menganalisis hasil pengukuran SAXS

6. Kakak tercinta yaitu Ananda Yogi Wicaksono atas seluruh dukungan, doa, dan motivasi yang diberikan kepada penulis.
7. Bapak Dr. Yono Hadi Pramono selaku ketua dan sekretariat Jurusan Fisika ITS.
8. Dwi Noor Jayanti dan Kurniasari selaku rekan satu tim penelitian arang tempurung kelapa ini yang telah banyak membantu selama praktikum di laboratirium dan penulisan laporan.
9. Mbak Fahmi Astuti yang telah berbagi pengalaman dan membimbing penulis dalam menyelesaikan laporan.
10. Segenap teman-teman Fisika Cosmic 2010 dan Magister Fisika ITS 2015 yang telah menjadi keluarga penulis selama menimba ilmu di Fisika ITS yang telah memberikan dukungan terbaik bagi penulis.
11. Semua pihak yang tidak dapat penulis sebutkan satu persatu.

Penulis menyadari dalam penyusunan laporan ini masih jauh dari sempurna. Oleh karena itu penulis mohon kritik dan saran membangun dari pembaca guna menyempurnakan laporan ini demi kemajuan ilmu pengetahuan dan teknologi di masa mendatang. Akhir kata penulis berharap semoga laporan Tugas Akhir ini bermanfaat bagi semua pihak, terutama untuk penelitian selanjutnya. Amiin Ya Rabbal Alamiin.

Surabaya, Desember 2016

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL

COVER PAGE	i
LEMBAR PENGESAHAN	ii
ABSTRAK	iv
ABSTRACT	vi
KATA PENGANTAR	viii
DAFTAR ISI	x
DAFTAR TABEL	xi
DAFTAR GAMBAR	xii
DAFTAR LAMPIRAN	xiii
BAB 1 PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang.....	1
1.2 Perumusan Masalah.....	2
1.3 Batasan Masalah	2
1.4 Tujuan Penelitian.....	3
1.5 Manfaat Penelitian	3
1.6 Sistematika Penulisan	3
BAB 2 TINJAUAN PUSTAKA	5
2.1 Grafena Oksida Tereduksi (rGO)	5
2.2 Penyayatan pada Grafena Oksida Tereduksi.....	6
2.3 Struktur Grafena Oksida Tereduksi	6
2.3.1 <i>Particle Size Analyzer</i> (PSA)	9
2.3.2 <i>X-Ray Diffraction</i> (XRD)	10
2.3.3 <i>Fourier Transform Infra-Red</i> (FTIR)	11
2.3.4 <i>Small Angle X-Ray Scattering</i> (SAXS)	12
BAB 3 METODOLOGI	15
3.1 Preparasi Sampel Arang Tempurung Kelapa.....	15
3.2 Proses Preparasi rGO dari Arang Tempurung Kelapa.....	15
3.3 Diagram Penelitian.....	17
BAB 4 ANALISIS DATA DAN PEMBAHASAN	19
4.1 Hasil Analisis Struktur.....	19
4.2 Hasil Analisis Distribusi Ukuran Partikel.....	21

4.3 Hasil Analisis Ikatan Molekul rGO.....	31
4.4 Hasil Analisis Ukuran dan Bentuk Partikel rGO	33
BAB 5 KESIMPULAN DAN SARAN	43
5.1 Kesimpulan.....	43
5.2 Saran.....	43
DAFTAR PUSTAKA.....	45
BIOGRAFI PENULIS	49

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Proses reduksi termal grafena oksida tereduksi (rGO)	5
Gambar 2.2 Preparasi grafena oksida tereduksi	6
Gambar 2.3 Struktur alotrop karbon berupa buckyballs, fullerenes, grafit	7
Gambar 2.4 TEM dari sintetis rGO, arang tempurung kelapa 400, 1000°C	8
Gambar 2.5 Grafik PSA konsentrasi 0,4 mg/ml dengan waktu penyayatan 10, 20, 30 dan 65 jam	9
Gambar 2.6 Grafik XRD dari arang tempurung kelapa tua yang dipanaskan pada suhu 400°C selama 5 jam dan dari lapisan nano GO dan rGO	10
Gambar 2.7 Pola grafik FTIR dari serbuk arang tempurung kelapa dengan pemanasan 400oC selama 5 jam	11
Gambar 2.8 Skema hamburan sinar-x dalam SAXS	12
Gambar 2.9 Skema vektor hamburan sinar-x dalam SAXS	13
Gambar 2.10 Contoh kurva hamburan vektor dan distribusi diameter partikel dari komposit rGO dengan karakterisasi SAXS	13
Gambar 3.1 Diagram Penelitian	17
Gambar 4.1 Grafik pola XRD pada a) Serbuk arang tempurung kelapa pada suhu 400°C (Ananta, 2015), b) dan c) Serbuk setelah dilakukan pencampuran dan penyayatan serta d) lapisan nano GO dan rGO (<i>Fu, 2013</i>)	20
Gambar 4.2 Ilustrasi proses pencampuran dan penyayatan rGO	21
Gambar 4.3 Grafik distribusi ukuran perbandingan metode eksfoliasi dan pencampuran HCL	22
Gambar 4.4 Grafik distribusi ukuran partikel rGO dengan perbandingan konsentrasi 0,1M dan 1M	25
Gambar 4.5 Grafik distribusi ukuran dengan perbandingan waktu penyayatan 3 dan 6 jam	27
Gambar 4.6 Grafik distribusi ukuran dengan perbandingan mol senyawa HCl	28

Gambar 4.7 Grafik FTIR (a,b) perbandingan konsentrasi rGO dan (c) rGO dengan proses eksfoliasi oleh <i>Konios</i> (2014)	32
Gambar 4.8 Kurva pencocokan pola hamburan vektor larutan RGO_1M_3jam_W pada SDD 0,8 m	37
Gambar 4.9 Kurva pencocokan pola hamburan vektor larutan RGO_0,1M_6jam_WH pada SDD 0,8 m	38
Gambar 4.10 Kurva pencocokan pola hamburan vektor larutan RGO_1M_3jam pada SDD 0,8 m dan RGO1_1M_6jam_WH pada SDD 4,3 m.....	39
Gambar 4.11 Kurva pencocokan pola hamburan vektor larutan RGO_0,1M_3jam_WH pada SDD 0,8 m.....	40

DAFTAR TABEL

Tabel 4.1 Hasil ukuran partikel untuk variasi perbandingan molaritas	15
Tabel 4.2 Hasil radius partikel dari variasi larutan rGO	41

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Novoselov dan Geim (2013) melakukan eksperimen mengenai grafena yang telah menarik minat besar dalam ilmu material karbon. Selama beberapa tahun, telah banyak penelitian yang dilakukan dan mengungkapkan bahwa grafena memiliki sifat konduktifitas yang baik (Hantel, 2013). Sebagai material baru, penggunaan grafena sangat menarik karena memiliki banyak keunggulan sifat seperti sifat mekanik, termal, listrik dan magnet yang baik (Pei, 2013).

Grafena adalah lapisan 2 dimensi (2D) atom-atom karbon yang membentuk ikatan sp^2 sehingga berbentuk sarang lebah (Danilov, 2013), sedangkan grafena oksida adalah lapisan 2 dimensi atom-atom karbon yang berikatan dengan oksigen seperti kelompok karboksil ($C=O$) yang dihasilkan dengan proses reduksi kimia (Park, 2011). Grafena oksida tereduksi (rGO) dapat diproduksi dengan mereduksi atom-atom oksigen yang terkandung di dalam grafena oksida menggunakan beberapa metode. Sonifikasi dan pengadukan di dalam air merupakan metode yang paling banyak digunakan (Loryuenyong, 2013). Banyak sedikitnya jumlah oksigen yang tereduksi dari grafena oksida akan sangat berpengaruh terhadap sifat fisika dan kimia dari material tersebut. Contohnya, telah diketahui bahwa perbandingan atom - atom karbon dengan oksigen dapat mempengaruhi sifat konduktifitas listrik dari material grafena oksida tereduksi berdasarkan pereduksi kimia yang digunakan. Pengaruh dari faktor-faktor ukuran partikel, metode oksidasi, temperatur reaksi dan pelarut yang menjadi daya tarik dilakukannya penelitian mengenai grafena (Park, 2011).

Hampir 60% penduduk Indonesia bekerja sebagai petani dan kebutuhan hidupnya bergantung pada hasil pertanian tersebut. Kelapa (*Cocos Nucifera, L.*) menghasilkan produksi buah per tahun total ~3.2 ton. Hasil minyak dari daging kelapa utamanya digunakan sebagai bahan baku rumah tangga dan industri, sedangkan tempurung kelapa terbatas pada keperluan rumah tangga seperti bahan bakar dan kerajinan tangan. Banyak limbah tempurung kelapa yang belum tergunakan. Oleh karena itu, peningkatan pemanfaatan limbah tempurung kelapa tua dilakukan untuk meningkatkan nilai ekonomisnya (Pinatik, 2014).

Pada dasarnya, tempurung kelapa mengandung unsur-unsur kimia seperti karbon,

hidrogen dan oksigen sebagai bentuk senyawa organik utama di samping unsur-unsur mineral seperti kalium, kalsium dan magnesium (Yerizam, 2013). Unsur terbanyak yang terkandung dalam tempurung kelapa tua adalah karbon dan oksigen. Berdasarkan penelitian sebelumnya oleh Nugraheni (2014), terdapat 51,09% karbon dan 48,22% oksigen. Kandungan mayoritas karbon dan oksigen tersebut dijadikan sebagai sumber pembentukan grafena oksida tereduksi dengan adanya perlakuan suhu (Nugraheni, 2014).

Pada penelitian sebelumnya, telah dilakukan karakterisasi XRD yang menunjukkan bahwa terbentuk fasa grafena oksida tereduksi (rGO) dari arang tempurung kelapa yang dipanaskan pada suhu 400°C dengan atmosfer udara bebas. Hasil uji celah pita energi menunjukkan rentang antara 0,07 - 0,67 eV dimana rentang tersebut termasuk dalam rentang nilai lebar celah pita energi dari grafena oksida tereduksi sebagai material semikonduktor (Nugraheni, 2014).

Namun, masih belum diketahui bagaimana bentuk dan ukuran dari ketebalan lapisan grafena oksida tereduksi. Dikarenakan belum adanya proses penyayatan yang diberikan selama proses penelitian sehingga struktur yang sebelumnya berupa tumpukan lapisan-lapisan yang beraglomerasi diharapkan dapat terbentuk beberapa lapisan tipis dari struktur grafena oksida tereduksi yang didapatkan dari pemanasan arang tempurung kelapa. Struktur tersebut dapat diketahui dengan karakterisasi (*Small Angle X-Ray Scattering*) SAXS. Karakterisasi SAXS memiliki rentang vektor hamburan rendah dan tinggi, sehingga diharapkan dapat mengidentifikasi ukuran partikel dari grafena oksida tereduksi dengan rentang ukuran yang lebar. Jadi, penelitian ini difokuskan pada mengidentifikasi struktur grafena oksida tereduksi yang telah mengalami proses pemanasan, pencampuran zat asam dan penyayatan pada arang tempurung kelapa tua menggunakan karakterisasi SAXS.

1.2 Rumusan Masalah

Rumusan Masalah pada penelitian ini adalah bagaimana struktur rGO dan distribusi ukuran partikel dalam larutan setelah adanya proses pencampuran zat asam pada arang batok kelapa.

1.3 Batasan Masalah

Pada penelitian ini, permasalahan dibatasi pada analisis struktur dan ketebalan

lapisan grafena oksida tereduksi dari proses kimia mekanik berupa penambahan zat asam dan mekanik berupa penyayatan larutan serbuk arang tempurung kelapa tua menggunakan ultrasonik. Beberapa pengujian yang dilakukan dalam penelitian ini diantaranya *X-Ray Diffraction* (XRD), *Particle Size Analyzer* (PSA), *Fourier Transform Infra Red* (FTIR) dan *Synchrotron Small Angle X-Ray Scattering* (SAXS).

1.4 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk menentukan struktur partikel rGO dan distribusi ukuran partikel dalam larutan setelah adanya proses pencampuran zat asam pada arang batok kelapa.

1.5 Manfaat Penelitian

Manfaat yang dapat diberikan melalui pembuatan thesis ini yaitu memberikan informasi mengenai adanya fasa grafena oksida tereduksi dengan struktur lapisan tipis yang terbentuk pada serbuk arang tempurung kelapa tua serta memunculkan inovasi baru akan pemanfaatan limbah tempurung kelapa tua agar kedepannya dapat menunjang teknologi dan rujukan penelitian-penelitian selanjutnya.

“ Halaman ini sengaja dikosongkan “

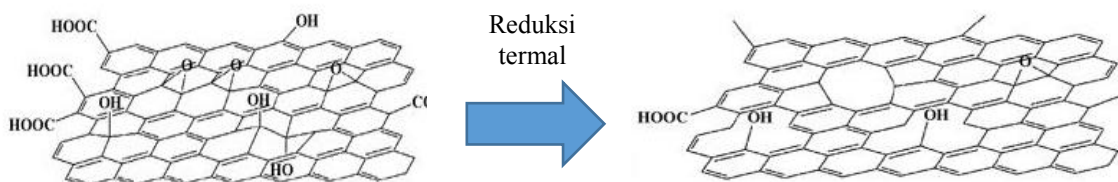
BAB 2

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Grafena Oksida Tereduksi

Dalam memahami struktur atom grafena, akan sangat membantu untuk mengenal struktur atom karbon beserta alotropnya. Karbon memiliki nomor atom 6 dan menyebabkan elektron menempati $1s^2$, $2s^2$, $2p_x^1$ and $2p_y^1$ dalam orbital atom (Schaffel, 2013). Grafena adalah salah satu alotrop karbon berskala nanometer. Tidak seperti grafit yang merupakan alotrop karbon paling umum, grafena adalah lapisan dua dimensi yang hanya dapat bergerak diantara atom-atom karbon dalam kisi dua dimensi (Pollard, 2011). Grafena memiliki struktur dua dimensi yang terdiri dari ikatan karbon sp^2 membentuk struktur heksagonal dimana menjadi dasar yang potensial untuk dijadikan berbagai aplikasi seperti sifat mekanik, termal dan listrik yang sangat baik (Park, 2011).

Proses perubahan grafena oksida dapat sangat merusak lapisan grafena, dimana memiliki konsekuensi lebih lanjut saat pengurangan senyawa (oksigen dan hidrogen). Grafena oksida mengandung beberapa lapisan grafena tunggal yang didalam ikatan heksagonalnya terdapat ikatan antara karbon dengan oksigen dan hidrogen (tergantung dari media dasar). Pengurangan oksigen dan hidrogen untuk memproduksi grafena oksida tereduksi (rGO), adalah proses yang sangat penting karena memiliki dampak besar pada kualitas grafena oksida yang diproduksi yang mempengaruhi sifat fisika dari rGO. Proses reduksi termal yang dilakukan oleh Scafford (2012) ditunjukkan pada Gambar 2.1.

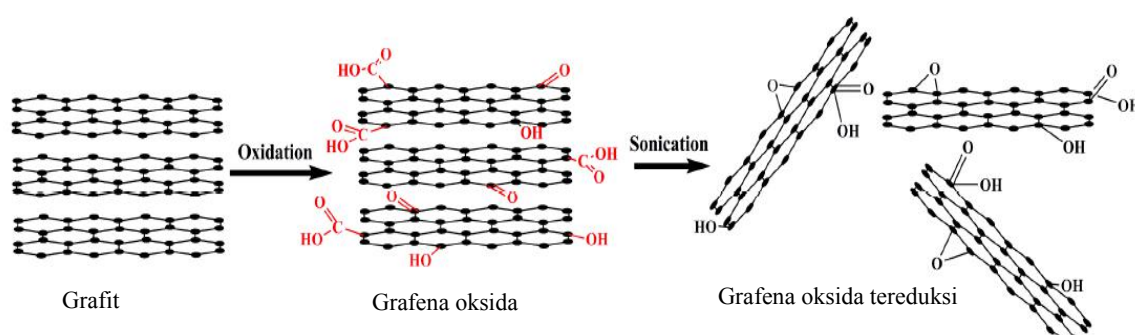


Gambar 2.1 Proses reduksi termal grafena oksida menjadi rGO (Scafford et al, 2012)

2.2 Penyayatan pada Grafena Oksida Tereduksi (rGO)

Dua permasalahan utama dalam memproduksi lapisan grafena adalah yang pertama mendapatkan lapisan grafena yang memiliki skala ketebalan yang cukup. Seperti yang diketahui bahwa walaupun grafit tersedia sangat melimpah di alam,

tetapi untuk dapat menyayat menjadi lapisan tunggal grafena sangatlah sulit. Permasalahan kedua, lapisan grafena sangat sulit bercampur dan terdistribusi secara homogen. Grafit oksida mengandung ikatan-ikatan oksigen dengan karbon yang tidak hanya sangat mudah diperoleh dengan proses oksidasi tetapi juga sangat mudah terlepas akibat adanya proses penyayatan menggunakan alat ultrasonik. Grafena oksida digunakan sebagai bahan dasar dalam pembentukan grafena oksida tereduksi (rGO) dengan cara reduksi kimia dan reduksi termal. Proses preparasi grafena oksida tereduksi ditunjukkan pada Gambar 2.2 (Kehayias, 2013). Lapisan oksida karbon tersebut dapat disayat dalam media air dengan ultrasonik (Kim, 2010). Penyayatan ultrasonik pada umumnya dilakukan selama 2 jam (Loryuenyong, 2013).

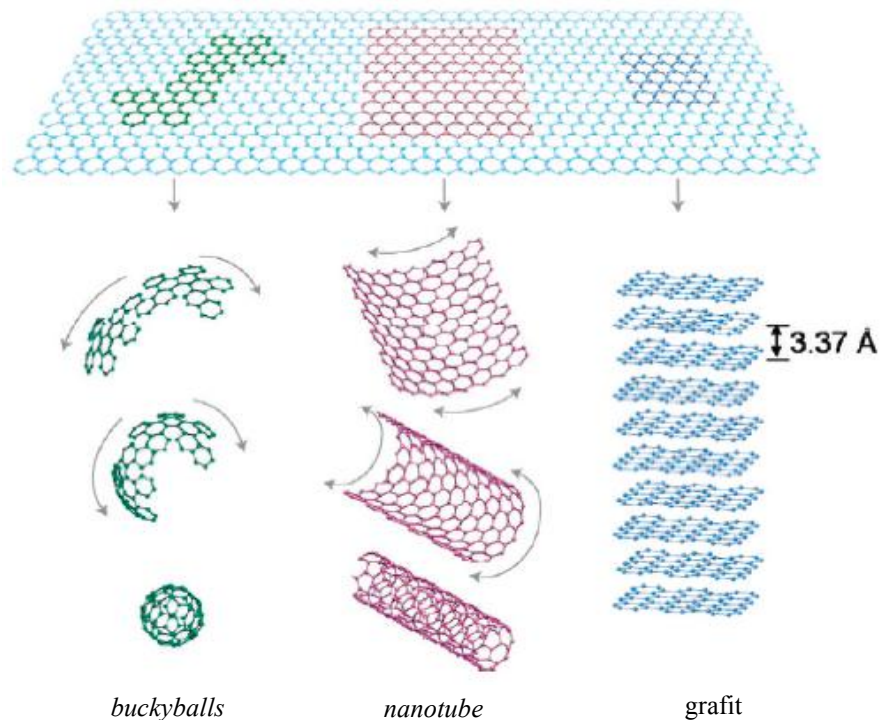


Gambar 2.2 Preparasi grafena oksida tereduksi (Kehayias, 2013)

2.3 Struktur Grafena Oksida Tereduksi (rGO)

Atom karbon dalam grafena terikat dengan ikatan sp^2 membentuk heksagonal dua dimensi. Grafena yang ideal memiliki 6 atom yang berikatan heksagonal. Adanya cacat membuat formasi 5 atau 7 atom anggota dari struktur grafena dan menyebabkan lengkungan pada permukaan yang datar. Pada saat yang sama, perpanjangan ikatan π pada ikatan aromatik membuat grafena cukup stabil dibandingkan dengan material berukuran nano lainnya (Hantel, 2013).

Alotrop karbon memiliki dimensi yang berbeda antara satu dengan lainnya. Seperti grafit (alotrop 3-D) terbuat dari lapisan-lapisan grafena yang bertumpuk-tumpuk satu sama lain dan terpisah sejauh $3,37\text{\AA}$. Sedangkan alotrop karbon seperti pada Gambar 2.3 dengan 0-D yaitu *fullerenes* (bola takraw) terbentuk dengan membungkus lapisan grafena. 1-D alotrop karbon yaitu carbon nanotubes (CNT) dan nano ribbons terbentuk dengan menggulung dan memotong lapisan dari grafena (Li, 2014).

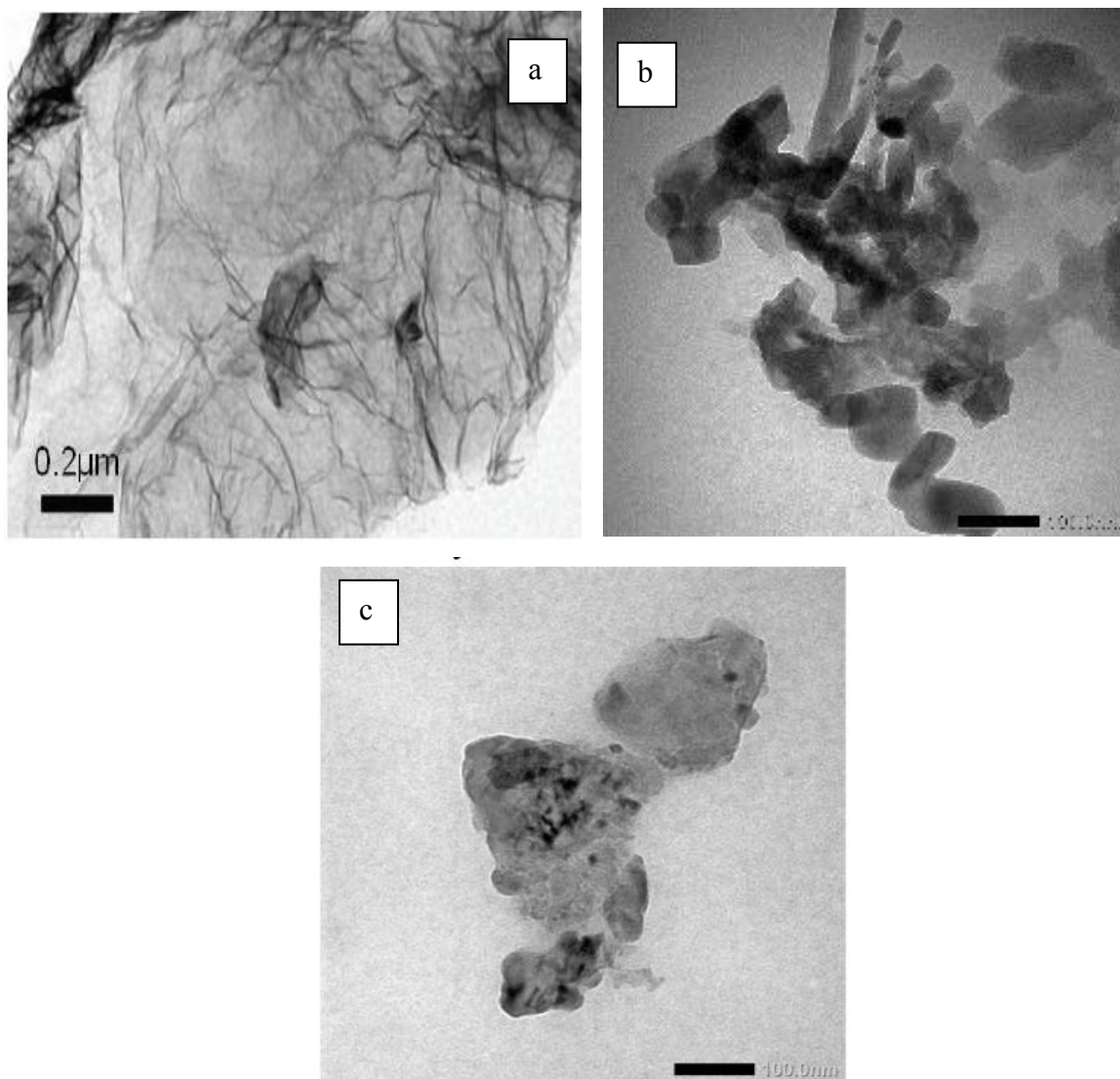


Gambar 2.3 Struktur alotrop karbon berupa *buckyballs*, *fullerences*, grafit (Li, 2014)

Salah satu jenis grafit yaitu grafit oksida yang mempunyai struktur lapisan hampir sama dengan grafit, tetapi atom pada grafit oksida lebih beragam karena adanya ikatan oleh oksigen pada karbon yang membuat tidak hanya jarak antar lapisan semakin lebar tetapi juga membuat ketebalan atom lapisan membesar. Proses reduksi dari atas ikatan oksigen dan karbon akan membentuk srtuktur grafena oksida tereduksi (rGO). Lapisan dari rGO biasanya mengandung lebih sedikit ikatan oksigen akibat reduksi yang dapat dilakukan dengan penyayatan menggunakan ultrasonik (Fu, 2013).

Pada penelitian sebelumnya, ukuran partikel telah diperoleh dengan karakterisasi dan menghasilkan ukuran antara 30-45 nm pada titik-titik tertentu (Nugraha, 2015). Seperti yang terlihat pada Gambar 2.4 (a), setelah mengalami proses oksidasi asam dan penyayatan lapisan menjadi lebih kecil dan transparan. Lapisan menjadi sangat kecil sehingga elektron dapat menembus melewati sampel. rGO menunjukkan tipe struktur yang berkerut yang menyebabkan terjadinya lipatan-lipatan. Gambar 2.4 (b) menunjukkan struktur dari arang tempurung kelapa tua yang berupa gumpalan yang tidak homogen dan bertumpuk dengan tidak teratur, sehingga ukuran partikel dan distribusinya tidak dapat ditentukan secara pasti. Ketidakteraturan struktur dan

gumpalan material menunjukkan bahwa material tersebut termasuk amorfus (Wachid, 2013).



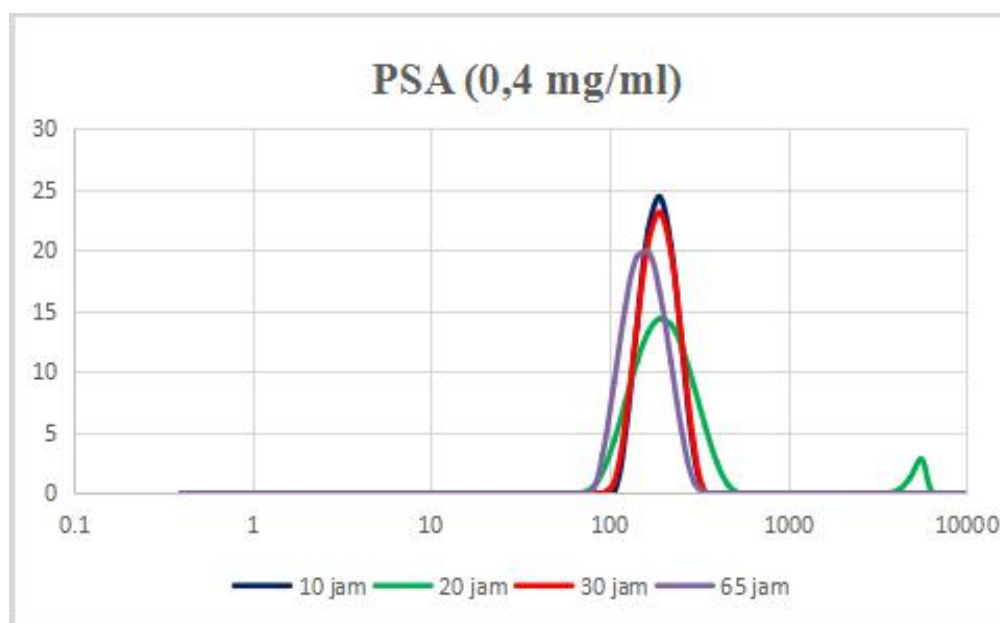
Gambar 2.4 TEM dari (a) sintesis rGO (Fu, 2013), (b) rGO dari arang tempurung kelapa tua yang dipanaskan pada suhu 400°C (Nugraha, 2015), (c) grafit dari arang tempurung kelapa tua yang dipanaskan pada suhu 1000°C (Wachid, 2013)

Berdasarkan hasil TEM pada Gambar 2.4 (b), setelah diberikan perlakuan penyayatan dan sentrifugasi pada arang tempurung kelapa dengan pemanasan 400°C, menunjukkan adanya gumpalan di beberapa bagian sekaligus juga memiliki tebal partikel yang tipis di beberapa bagian. Berdasarkan Gambar 2.4 (c), terdapat struktur amorfus dan kristalin yang terbentuk. Titik - titik hitam yang muncul merupakan struktur grafit nano kristalin. Bagian tipis dari partikel tersebut, diprediksi dapat menjadi lapisan - lapisan tipis dari pemanasan tempurung kelapa tua setelah dilakukan metode kimia mekanik. Ketebalan lapisan tersebut dapat diketahui dengan

karakterisasi struktur yang dapat mengukur radius ukuran partikel dan bentuk partikel yaitu Small Angle X-Ray Scattering (SAXS).

2.3.1 Particle Size Analyzer (PSA)

Particle Size Analyzer (PSA) adalah salah satu karakterisasi yang dapat digunakan untuk mengetahui ukuran partikel serta distribusinya dalam suatu larutan. Prinsip kerja PSA menggunakan hamburan cahaya dinamis atau Dynamic Light Scattering (DLS). Dengan prinsip ini PSA dapat mengukur ukuran dan distribusi partikel yang terdispersi dalam sebuah volum larutan dengan rentang konsentrasi larutan yang besar. Sistem pengukuran zetasizer adalah mengukur gerak *Brownian* dari partikel dalam larutan menggunakan prinsip DLS. Teori gerak Brownian partikel adalah gerak acak dari suatu partikel dalam larutan akibat adanya pergerakan acak (pengeboman) antar partikel tersebut (Buku Panduan Malvern, 2009).



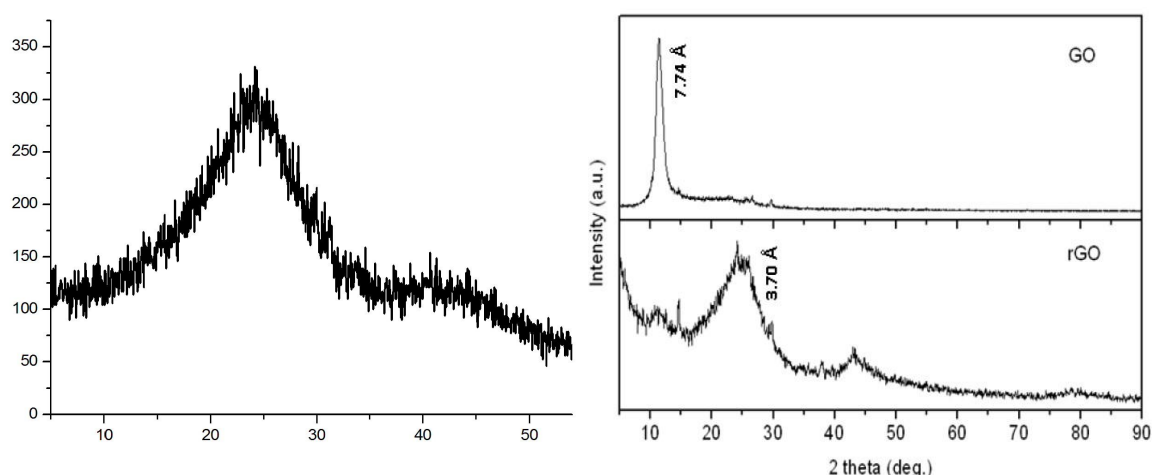
Gambar 2.5 Grafik PSA konsentrasi 0,4 mg/ml dengan waktu penyayatan 10, 20, 30 dan 65 jam

Gambar 2.5 menunjukkan hasil grafik PSA dari sampel larutan rGO arang tempurung kelapa tua dengan konsentrasi tertentu yang dilakukan proses penyayatan selama 10, 20, 30 dan 65 jam. Puncak - puncak yang muncul berada pada daerah ukuran partikel lebih dari 100 nm. Ukuran dan distribusi partikel yang dihasilkan mencerminkan atau mewakili ukuran diameter partikel dalam satu volum larutan tetapi tidak mewakili keseluruhan ukuran partikel dalam suatu larutan.

2.3.2 Difraktometer Sinar-X (XRD)

Difraktometer sinar-X merupakan salah satu teknik penguraian sinar-X yang sangat sering digunakan dalam karakterisasi material. XRD digunakan untuk memeriksa struktur kristal dalam serbuk sampel, yang biasa disebut difraktometer serbuk sinar-X (*X-Ray Powder Diffractometry*). Difraktometer memungkinkan kita untuk mengidentifikasi struktur kristal dan kualitas dengan menganalisis kemudian membandingkan spektrum dengan *database* yang berjumlah lebih dari 60.000 spektrum difraksi dari zat kristalin yang telah diketahui. Metode difraksi dapat mengidentifikasi senyawa kimia dari struktur kristalnya, tidak dari komposisi elemen kimianya. Hal ini menunjukkan bahwa perbedaan senyawa (atau fasa) yang mempunyai kesamaan komposisi dapat diidentifikasi (Leng, Yang, 2008).

Berdasarkan penelitian sebelumnya yang ditunjukkan pada Gambar 2.6, telah diperoleh bahwa terdapat fasa grafena oksida tereduksi dari hasil XRD pada arang tempurung kelapa tua yang dipanaskan pada suhu 400°C selama 3 jam.



Gambar 2.6 Grafik XRD dari arang tempurung kelapa tua yang dipanaskan pada suhu 400°C selama 5 jam (Nugraha, 2014) dan dari lapisan nano GO dan rGO (Fu, 2013)

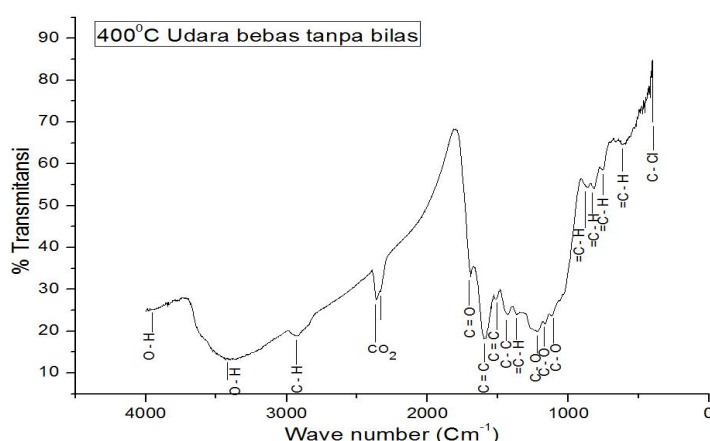
Pola XRD pada suhu 400°C dengan waktu penahanan selama 5 jam memiliki posisi puncak yang sama dengan grafena oksida tereduksi disekitar 24° dan 43° (Nugraha, 2014). Hasil tersebut sama dengan penelitian lain oleh Fu (2013) dimana memiliki puncak difraksi yang lebar dengan bidang (002) sekitar sudut 24° dan di sudut 43° dengan bidang (100). Lebar dan pergeseran yang menjadi karakteristik puncak tersebut dikarenakan pendeknya jarak antar layer yang saling menumpuk. Jarak antar lapisan dari rGO adalah 0,337 nm (3,37Å), sedikit lebih besar dari grafit

yang dihasilkan dan beberapa kecil bagian yang mengandung oksigen atau cacat struktur lainnya (Prasetya, 2014).

2.3.3 Transformasi *Fourier* Infra Merah (FTIR)

Transformasi *Fourier* Infra merah (FTIR) merupakan salah satu alat spektroskopi yang menggunakan metode tranformasi *fourier* untuk mengukur resapan spektrum inframerah yang dipancarkan dari sumber menuju material uji pada berbagai bilangan gelombang. Spektroskopi infra merah merupakan suatu teknik yang didasarkan pada getaran dari atom molekul. Spektrum diperoleh dengan melewati radiasi infra merah melalui sampel dan membaca sebagian radiasi yang diserap pada energi tertentu oleh molekul. Keluaran yang diperoleh dari spektroskopi FTIR yaitu berupa grafik pola puncak-puncak dari interaksi setiap molekul dalam material uji yang menyerap energi dari spektrum inframerah yang ditunjukkan dengan grafik hubungan prosentase transmisi (%T) terhadap bilangan gelombang (cm^{-1}). Masing-masing atom molekul yang saling berikatan memiliki nilai resapan energi spektrum inframerah masing-masing.

Gambar 2.7 merupakan hasil grafik FTIR dari arang tempurung kelapa tua pada suhu pemanasan 400°C yang menunjukkan masih banyaknya ikatan-ikatan yang terbentuk antara C=O, C-O, C=C dan O-H. Hal ini menunjukkan bahwa terindikasi adanya fasa *reduced graphene oxide* pada suhu rendah. Pada suhu rendah masih terdapat banyak ikatan hirdoksil (O-H), ikatan karbonil (C=O) dan aromatik (C-H) (Nugraheni, 2014).



Gambar 2.7 Pola grafik FTIR dari serbuk arang tempurung kelapa dengan pemanasan 400°C selama 5 jam (Nugraheni, 2014)

2.3.4 Hamburan Sinar-X Sudut Kecil Sinkrotron (SAXS)

Hamburan Sinar-X Sudut Kecil Sinkrotron (*Small angle X-Ray Scattering*) (SAXS) (Guinier, 1939 dan Porod, 1951) menjadi alat karakterisasi yang berpotensi untuk mengetahui distribusi partikel melewati perhitungan intensitas hamburan atas berbagai rentang ukuran (vektor hamburan) (Beaucage, 2004). SAXS merupakan teknik yang tepat untuk sistem koloid dan polimer yang sangat tepat untuk mengidentifikasi struktur nano. Sejak tahun 1990, SAXS telah digunakan untuk mempelajari struktur partikel nano dari semikonduktor dengan metode sintesis kimia basah (Britton, 2009). Skema hamburan dan vektor hamburan dalam SAXS ditunjukkan pada Gambar 2.8 dan 2.9.

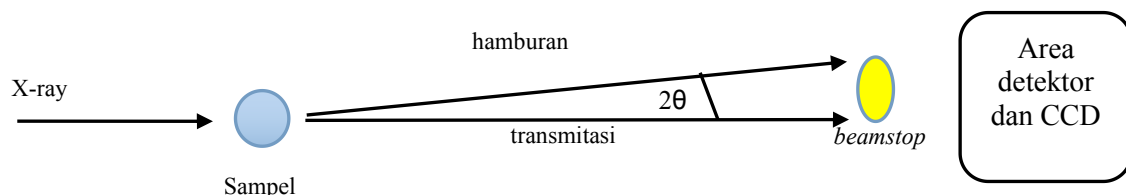
Pendekatan termudah untuk mengetahui fungsi distribusi dalam SAXS yaitu menggunakan fungsi *Gaussian* atau *log-normal* distribusi ukuran partikel dan jumlah fungsi hamburan termudah yaitu fungsi lingkaran. Fungsi distribusi tetap untuk tipe ini dapat secara lokal diminimalkan terhadap data hamburan untuk menghasilkan distribusi ukuran partikel (Britton, 2009). Pada Gambar 2.10 ditunjukkan contoh kurva hamburan vektor dari sampel komposit rGO dengan disertai ukuran diameter partikel komposit (Hussain, 2014).

Intensitas hamburan sinar X $\{I(q)\}$ secara eksperimental menghasilkan fungsi dari vektor hamburan (q) yang dirumuskan dengan :

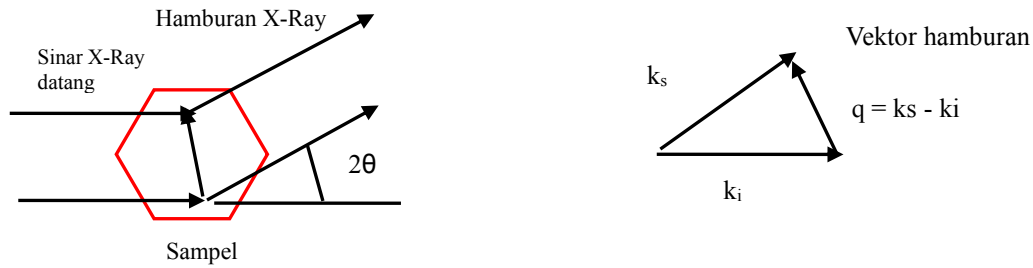
$$q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda} \quad \dots\dots\dots 2.1$$

$$q \approx \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right) \theta \quad \dots\dots\dots 2.2$$

Teknik SAXS sangat berguna jika struktur dari material dalam level atomik, dari 10 hingga 100 nm (Cattani).



Gambar 2.8 Skema hamburan sinar X dalam SAXS (Amemiya, 2010)



Gambar 2.9 Skema vektor hamburan sinar X dalam SAXS (Amemiya, 2010)

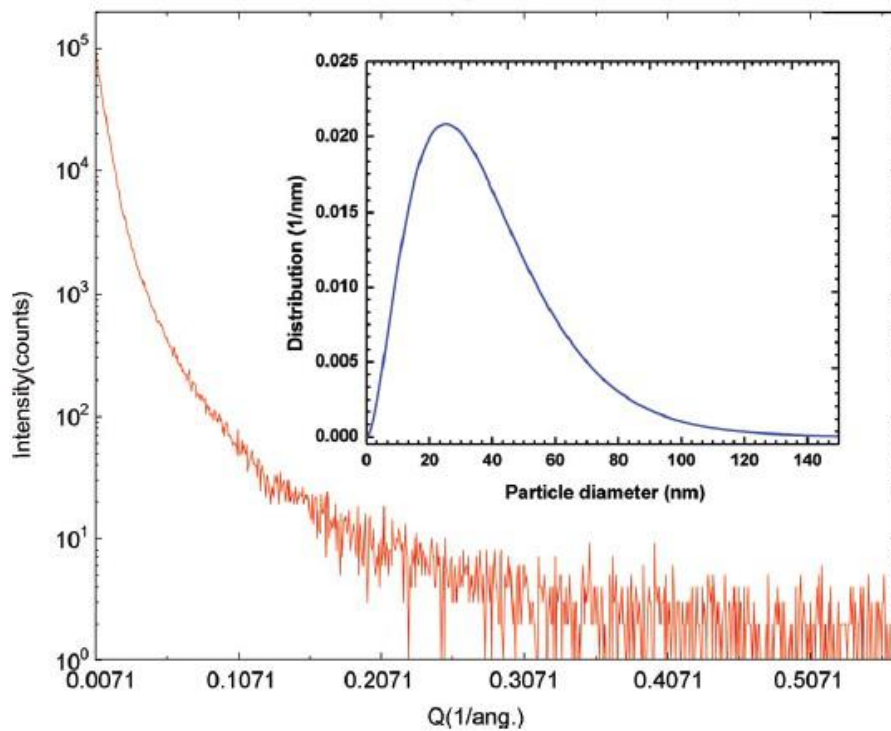
dimana : λ adalah panjang gelombang sinar x

θ adalah sudut hamburan sinar x dari sampel

q adalah hamburan vektor sinar x dari sampel

k_s adalah gelombang hamburan sinar x dari sampel

k_i adalah gelombang datang sinar x yang diteruskan dari sampel



Gambar 2.10 Contoh kurva hamburan vektor dan distribusi diameter partikel dari komposit rGO dengan karakterisasi SAXS (Hussain, 2014)

“ Halaman ini sengaja dikosongkan “

BAB III

METODE PENELITIAN

3.1 Preparasi Sampel Arang Tempurung Kelapa

Preparasi sample dilakukan dengan membersihkan tempurung kelapa tua dari serabutnya hingga tersisa tempurung kelapa tua. Kemudian tempurung kelapa tua dibakar di atas nyala api hingga terbentuk arang tempurung agar kadar air yang terkandung hilang dan meningkatkan kadar karbon dalam arang. Lalu dihaluskan dengan menggunakan mortar dan diayak dengan saringan berukuran 400 mesh. Tempurung kelapa tua ini dijadikan serbuk agar distribusi panas ketika karbonisasi menjadi lebih merata dan homogen. Sampel kemudian diberi perlakuan pemanasan di dalam furnace agar didapatkan serbuk arang dengan struktur grafena oksida tereduksi (rGO).

3.2 Proses Preparasi rGO dari Arang Tempurung Kelapa

Preparasi rGO dari arang tempurung kelapa tua diawali dengan proses karbonisasi dilakukan menggunakan *crucible* di dalam furnace pada atmosfer udara bebas dengan suhu 400°C dan waktu penahanan 5 jam. Pada proses karbonisasi ini terjadi penguraian bahan-bahan organik yang terkandung di dalam tempurung kelapa seperti CO, CH, H₂ dan CH₄. Pemilihan waktu penahanan berdasarkan penelitian sebelumnya oleh Nugraha (2015) yang menyebutkan bahwa dengan waktu penahanan tersebut menghasilkan fasa rGO.

Setelah karbonisasi, dilakukan proses pencampuran antara serbuk arang tempurung kelapa dan HCl dalam 100 ml aquades menggunakan *hot plate* pada suhu 70°C dengan variasi perbandingan mol 1 : 1 dan 1 : 0,2 serta variasi molaritas HCl yaitu 0,1M dan 1M. Kemudian dilakukan proses penyayatan menggunakan ultrasonik dengan daya 500 watt selama 3 jam dan 6 jam untuk masing-masing variasi agar ikatan antar lapisan rGO dapat terlepas dan menghasilkan ukuran ketebalan partikel yang lebih tipis. Kemudian dilakukan sentrifugasi menggunakan *centrifuge* selama 40 menit untuk memperoleh larutan arang tempurung kelapa tanpa adanya endapan serbuk. Ukuran diameter serta distribusi partikel rGO dapat diketahui melalui karakterisasi *Particle Size Analyzer* (PSA) yang terdapat di Laboratorium Zat Padat Jurusan Fisika ITS. Pengujian tersebut dilakukan agar mengetahui bahwa ukuran

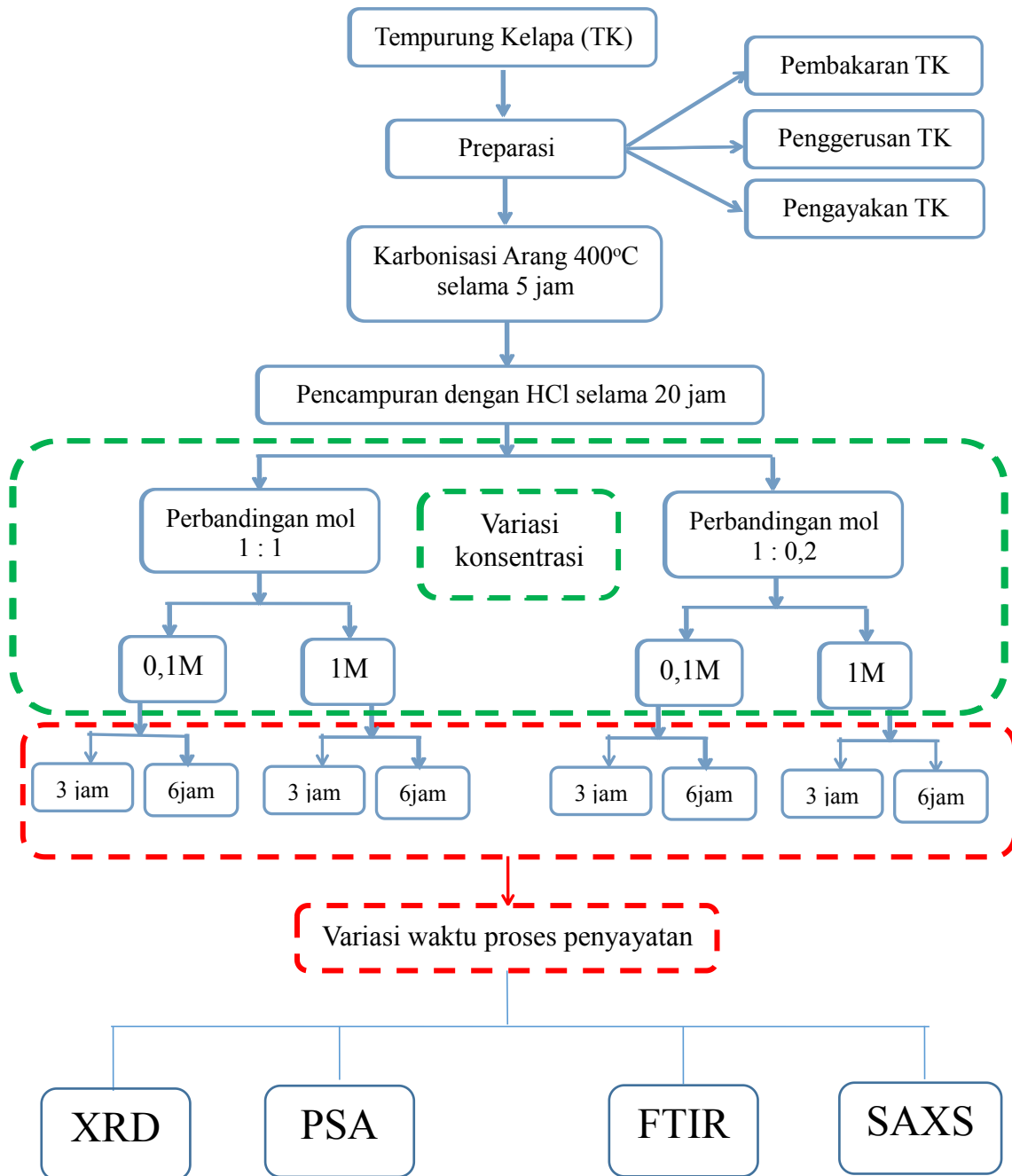
partikel dalam sampel telah homogen sebelum dilakukan pengujian SAXS agar diperoleh grafik yang dapat mengidentifikasi struktur dan ketebalan lapisan dari arang tempurung kelapa.

Sedangkan ukuran radius partikel dapat diketahui dengan *Small Angle X-Ray Scattering* (SAXS) dengan sumber berupa sinkrotron x-ray pada *beamline* 1.3 di *Synchrotron Light Research Institute*. Jarak antara sampel ke detektor yang digunakan yaitu 3,2 meter. Proses identifikasi struktur dilakukan dengan pencocokan kurva dan gambar menggunakan software SAXSIT dan SASFIT.

Fasa dan struktur yang terbentuk setelah adanya proses pencampuran larutan asam dapat diketahui melalui karakterisasi *X-Ray Diffraction* (XRD) di jurusan Teknik Material dan Metalurgi ITS. Pengukuran XRD dimulai dari sudut 5° - 55° dengan step $0,017^{\circ}$. XRD ini menggunakan panjang gelombang Cu K- α_1 sebesar $1,5046\text{\AA}$. Proses identifikasi fasa didasarkan pada pencocokan data secara kualitatif dengan menggunakan referensi jurnal.

Ikatan molekul yang terbentuk setelah adanya proses pencampuran larutan asam dapat diketahui dengan karakterisasi *Fourier Transform Infra-Red* (FTIR) di laboratorium karakterisasi Jurusan Teknik Material dan Metaurgi Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya. Pengujian FTIR pada penelitian ini digunakan untuk menentukan apakah ada ikatan atom Cl dan karbon hasil dari tersisipnya senyawa HCL diantara lapisan rGO. Merk alat yang digunakan adalah FTIR tipe 8400S SHIMADZU. Rentang panjang gelombang yang digunakan yaitu antara 500 cm^{-1} sampai dengan 4000 cm^{-1} . FTIR menghasilkan data berupa grafik intensitas terhadap panjang gelombang. Intensitas menunjukkan tingkatan jumlah senyawa sedangkan panjang gelombang menunjukkan jenis senyawa yang terdapat dalam bahan.

3.3 Diagram Penelitian



Gambar 3.1 Diagram Penelitian

“ Halaman ini sengaja dikosongkan “

BAB 4

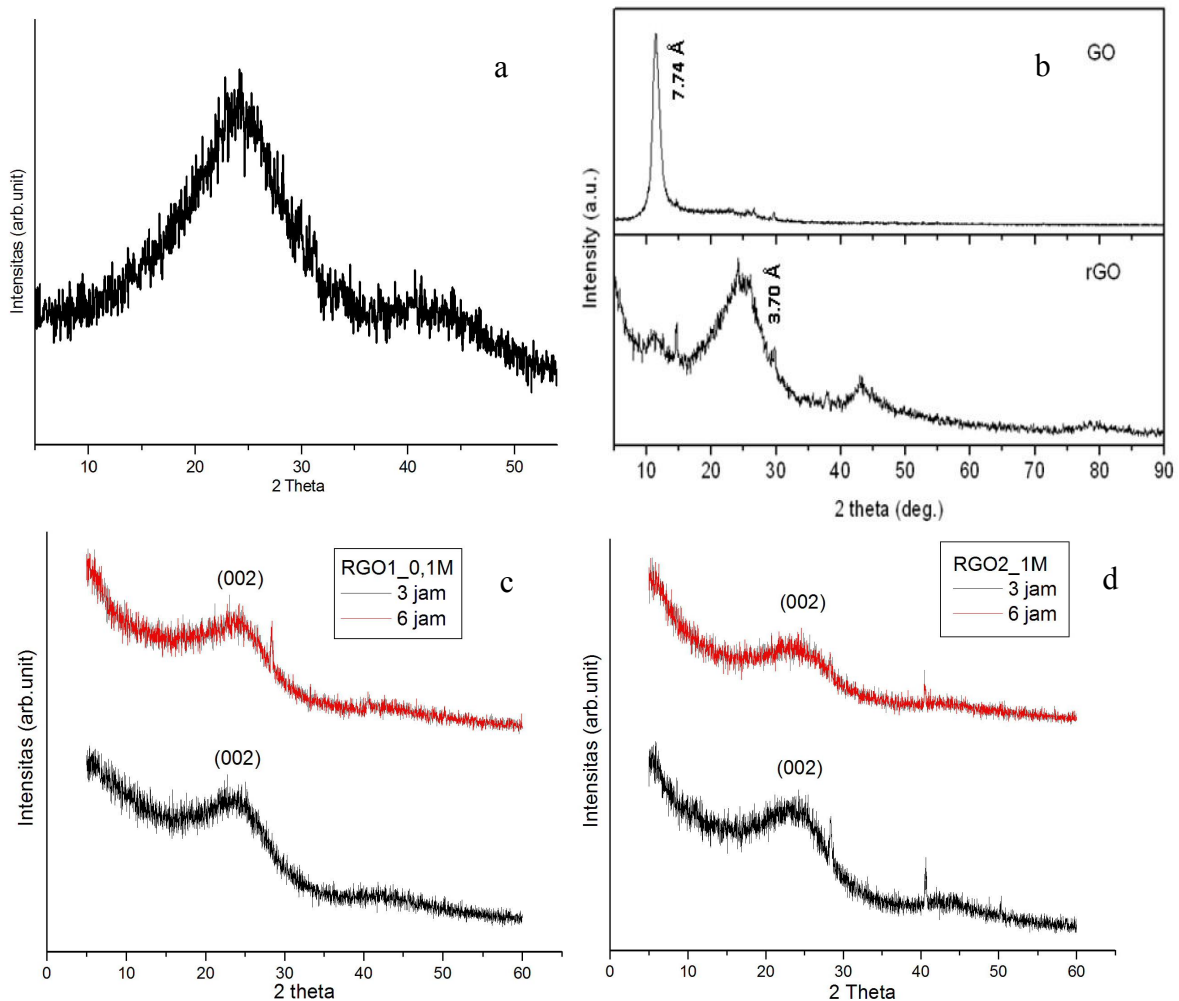
ANALISIS DATA DAN PEMBAHASAN

4.1 Hasil Analisis Struktur rGO

Analisis struktur dan fasa rGO dari arang tempurung kelapa tua dapat diketahui melalui karakterisasi *X-Ray Diffraction* (XRD). Pola difraksi serbuk awal (suhu 400°C 5 jam) pada Gambar 4.1 (a), menghasilkan struktur amorf dengan dua puncak lebar yaitu pada posisi sekitar $2\theta = 24^\circ$ dan 43° yang menunjukkan bahwa pada perlakuan suhu rendah yang diberikan telah terbentuk fasa grafena oksida tereduksi (rGO) dengan bidang kristal (002) pada sudut 24° dan (100) pada sudut 43° . Hal ini ditunjukkan dengan pencocokan secara kualitatif dari hasil XRD sampel dengan referensi oleh Fu pada Gambar 4.1 (b). Pola difraksi yang dihasilkan dari seluruh variasi sampel dengan pencampuran HCl ditunjukkan pada Gambar 4.1 (c) dan (d) yang memiliki struktur amorf yaitu lapisan-lapisan heksagonal atom karbon yang tersusun acak dan terdiri dari satu puncak lebar yaitu pada posisi sekitar sudut $2\theta = 24^\circ$ dan sudut 43° dengan intensitas yang rendah jika dicocokkan secara kualitatif dengan XRD oleh Fu pada Gambar 4.1 (b), dimana mencerminkan bahwa terbentuk fasa grafena oksida tereduksi (rGO). Dibandingkan dengan pola XRD arang tempurung kelapa awal yang hanya dilakukan proses karbonisasi pada suhu 400°C dengan waktu penahanan 5 jam, menunjukkan sangat rendahnya intensitas puncak yang muncul pada posisi $2\theta = 43^\circ$. Hal ini mengindikasikan bahwa telah terjadi perubahan struktur hasil pencampuran karbon arang tempurung kelapa dengan larutan HCl.

Sangat rendahnya puncak lebar pada sudut 43° dari RGO1_0,1M dan RGO2_1M menunjukkan bahwa susunan bidang kristal dengan hkl (100) pada bidang heksagonal karbon telah mengalami reduksi ukuran sehingga terdapat partikel dengan ukuran yang lebih kecil (tipis). Hal ini menunjukkan bahwa tersisipnya atom - atom Cl pada ikatan karbon antar lapisan telah merusak ikatan *van der Waals* sehingga menjadi renggang dan terputus dengan adanya penyayatan menggunakan ultrasonik dan mereduksi atom - atom pada bidang (100). Sehingga ketika sinar-X ditembakkan pada atom-atom sampel menunjukkan rendahnya puncak pada sudut 43° karena tereduksinya susunan heksagonal

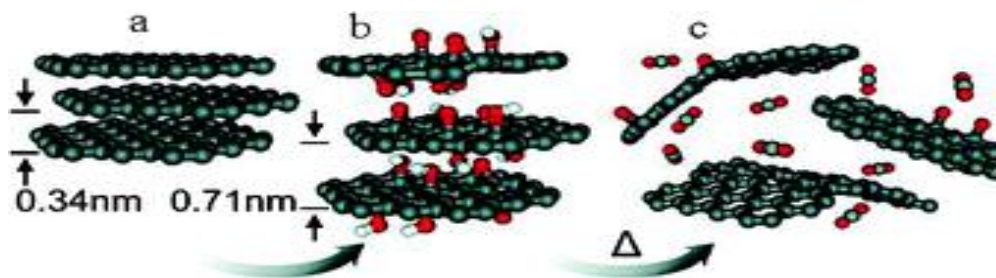
atom-atom karbon pada bidang (100) sehingga hampir tidak ada atom-atom yang tersusun pada bidang tersebut tertembak oleh sinar - x. Semakin teratur dan panjang susunan suatu atom yang membentuk kristal, maka jumlah cacahan dari intensitas yang mengenai atom-atom akan semakin banyak sehingga semakin banyak pula cacahan difraksi yang diterima oleh detektor yang menyebabkan intensitas terbentuk runcing dan tajam. Perbedaan konsentrasi larutan dan waktu penyayatan yang diberikan tidak menunjukkan perubahan yang besar pada hasil XRD. Secara keseluruhan, pola puncak grafik XRD menghasilkan puncak lebar pada sudut 23° dan 43° dengan intensitas yang lebih rendah daripada hasil XRD serbuk awal.



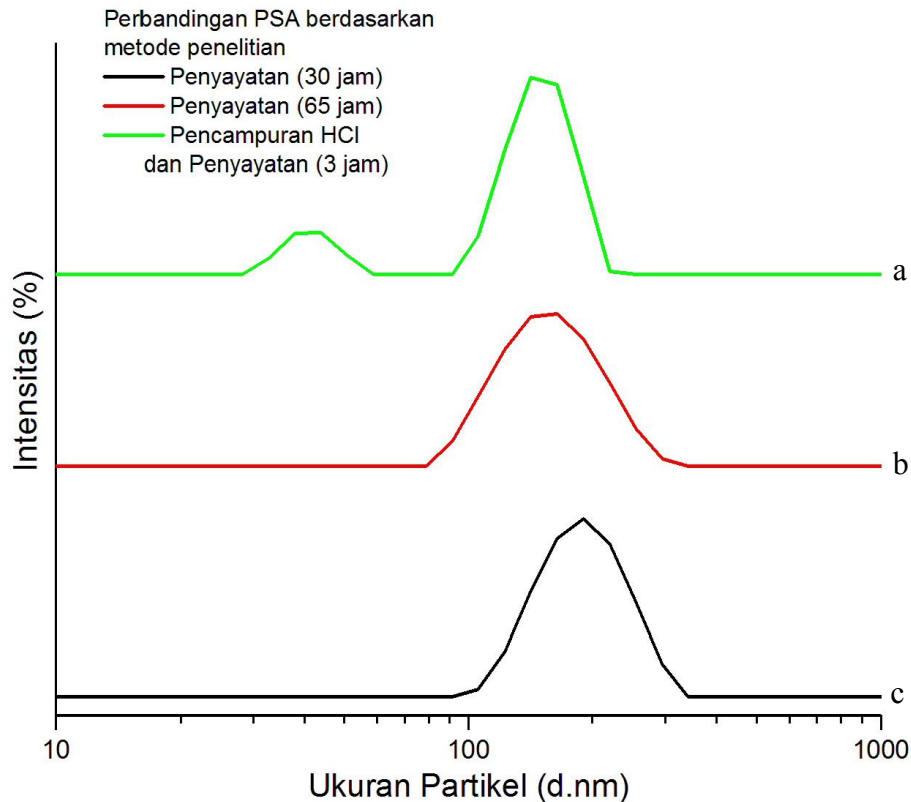
Gambar 4.1 Grafik pola XRD pada a) Serbuk arang tempurung kelapa pada suhu 400°C (Nugraha, 2015), b) lapisan nano GO dan rGO (Fu, 2013), c) dan d) Serbuk setelah dilakukan pencampuran dan penyayatan

4.2 Hasil Analisis Distribusi Ukuran Partikel

Analisis ukuran partikel dan distribusinya dalam suatu volum larutan dapat diketahui melalui salah satu karakterisasi yaitu *Particle Size Analyzer* (PSA). Grafik hasil pengukuran PSA ditampilkan pada Gambar 4.3. Grafik tersebut menunjukkan bahwa adanya perbedaan hasil diameter ukuran partikel dan distribusi dari proses pencampuran serbuk arang dengan larutan HCl dalam konsentrasi yang berbeda dibandingkan dengan tanpa adanya proses pencampuran (proses penyayatan). Hal ini menunjukkan bahwa atom-atom Cl dari senyawa HCl telah terputus dari ikatannya dengan hidrogen dan tersubstitusi di antara ikatan lemah *van der Waals* dalam lapisan rGO. Atom - atom Cl tersebut saling berikatan dengan atom karbon (C), sedangkan atom H berikatan dengan atom - atom oksigen (O) dan atom - atom karbon yang pada akhirnya sebagian akan hilang dalam bentuk gas selama proses pengadukan. Hal ini dikarenakan proses pengadukan dan adanya perlakuan suhu (70°C) memberikan tambahan energi lebih dari energi ikatan yang dimiliki senyawa HCl yaitu sebesar 432 KJ/mol (<http://www.chemguide.co.uk/physical/energetics/bondenthalpies.html>), sehingga mengakibatkan ikatan atom-atom Cl terputus dari senyawa HCl dan memberikan tambahan energi Cl untuk menyisip dan berikatan dengan atom-atom karbon membentuk ikatan C-Cl. Tersubstitusinya atom - atom Cl tersebut merusak jarak antar lapisan rGO dan membuat jarak antar lapisan menjadi lebih renggang. Adanya proses penyayatan akibat energi getaran yang dihasilkan dari ultrasonik membuat terputusnya ikatan lemah *van der Waals* yang telah renggang sehingga jarak antar lapisan menjadi semakin tipis yang ditunjukkan oleh munculnya dua puncak grafik pada Gambar 4.3 (a) yaitu diameter sekitar 40 nm dan 110 nm. Ilustrasi proses tersebut ditunjukkan pada Gambar 4.2



Gambar 4.2 Ilustrasi proses pencampuran dan penyayatan rGO (Ciszewski, 2013)



Gambar 4.3 Grafik distribusi ukuran perbandingan metode eksfoliasi dan pencampuran HCl

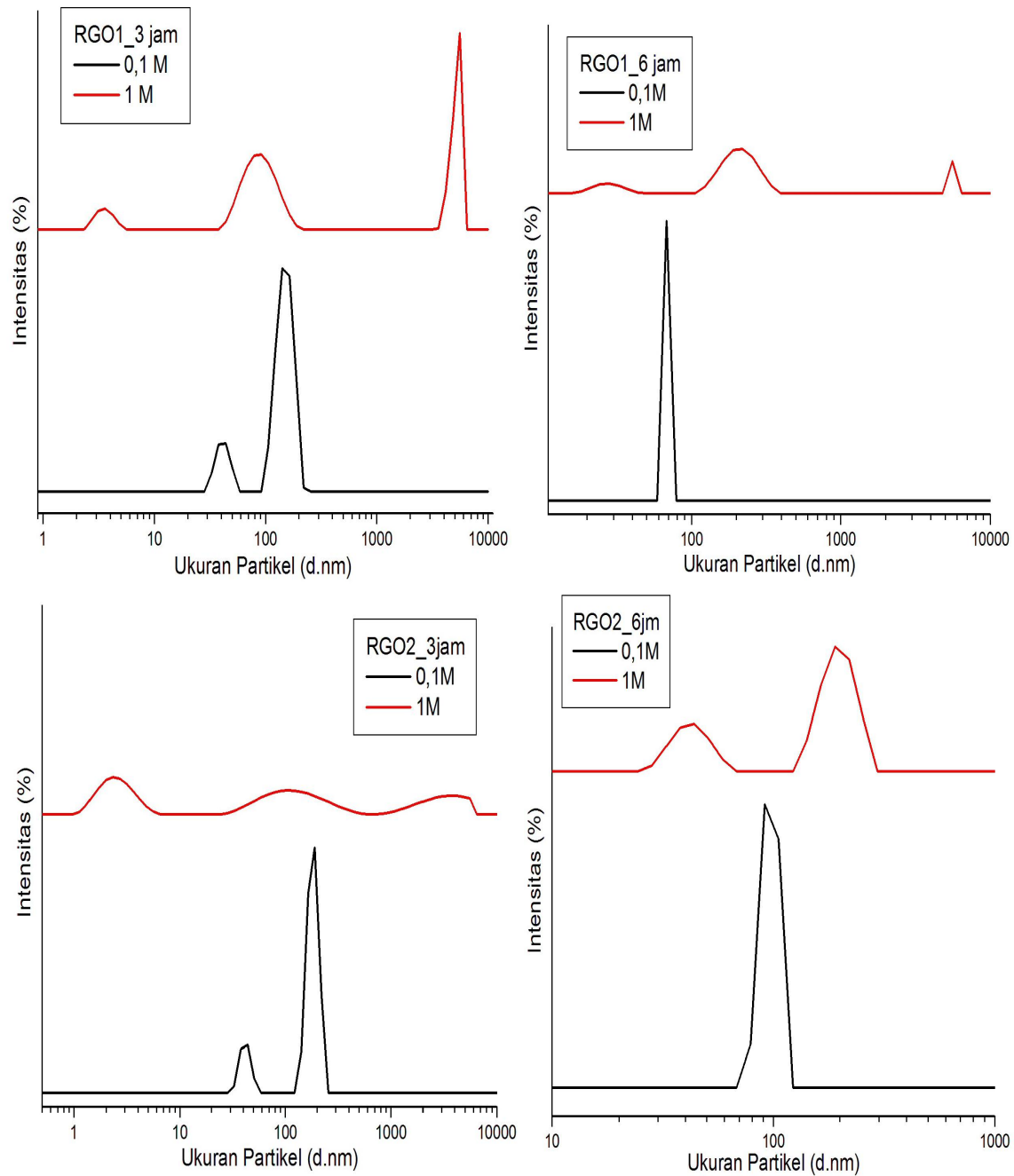
Pada Gambar 4.3 (b) dan (c) digunakan metode eksfoliasi yang menunjukkan bahwa proses penyayatan yang dilakukan melalui penggetaran larutan sampel dengan waktu ekstrim selama 30 dan 65 jam tidak terlalu efektif dalam proses mereduksi ukuran partikel menjadi berukuran nano. Hal ini dikarenakan ukuran awal serbuk arang tempurung kelapa yang sangat besar ($>1\mu\text{m}$), sehingga saat digetarkan dalam medium air menggunakan ultrasonik dengan daya 500 watt, energi getaran yang dihasilkan tidak cukup kuat untuk mereduksi atau menyayat ikatan lemah antar lapisan yang terdiri dari susunan lapisan dari rGO dalam jumlah banyak dan sangat tebal. Sehingga tetap menghasilkan ukuran partikel yang besar yaitu sekitar 110-120 nm. Hasil distribusi ukuran terhadap intensitas dari PSA menunjukkan saat penggunaan proses penyayatan selama 30 jam menghasilkan ukuran diameter lapisan rGO sebesar 191,7 nm sebanyak 100%, sedangkan penggunaan proses penyayatan selama 65 jam menghasilkan ukuran diameter lapisan rGO sebesar 161,9 nm sebanyak 100% dan penggunaan proses pencampuran HCl dan penyayatan selama 3 jam menghasilkan ukuran partikel rGO

sebesar 41,3 nm sebanyak 15,3% dan ukuran 150,2 nm sebanyak 84,7%. Nilai prosentase intensitas menunjukkan probabilitas banyaknya partikel melayang dan bergerak acak yang tertembak dalam sebuah volum larutan tersebut. Salah satu contoh, untuk penggunaan proses pencampuran HCl dan penyayatan menghasilkan dua puncak grafik yang menunjukkan bahwa di antara partikel-partikel yang tertembak selama proses pengukuran di dalam sebuah volum larutan terdapat ukuran partikel sebesar 41,3 nm sebanyak 15,3% dan terdapat ukuran partikel sebesar 150,2 nm sebanyak 84,7%. Ukuran partikel sebesar 41,3 nm (<100 nm) terindikasi bahwa ukuran tersebut merepresentasikan tebal lapisan rGO yang telah tersayat akibat tersisipnya atom-atom Cl yang merusak ikatan dan jarak antar lapisan rGO, sedangkan ukuran partikel 150,2 nm merepresentasikan diameter penampang lapisan rGO yang terdiri dari struktur heksagonal atom-atom karbon. Munculnya ukuran partikel di bawah 100 nm tersebut menjadi salah satu acuan untuk dilakukan karakterisasi bentuk dan ukuran tebal lapisan partikel rGO dengan SAXS.

Grafik hasil pengukuran PSA perbandingan molaritas ditampilkan pada Gambar 4.4. Grafik tersebut menunjukkan bahwa perbedaan konsentrasi larutan 0,1M dan 1M yang diberikan selama proses sintesis menunjukkan adanya perubahan puncak. Konsentrasi larutan 1M membutuhkan massa karbon dari arang yang lebih banyak daripada konsentrasi larutan 0,1M, sehingga menyebabkan kepekatan dalam larutan 1M lebih besar daripada 0,1M. Pada konsentrasi pekat (kurva merah) terdapat 3 puncak yaitu di bawah 100 nm, di daerah 100 nm dan diatas 100 nm. Sedangkan untuk konsentrasi rendah (kurva hitam) terdapat satu dan atau dua puncak yang hanya muncul pada daerah di bawah 100 nm dan di daerah 100 nm. Hal ini dikarenakan pada konsentrasi pekat partikel-partikel pada rGO yang melayang dalam larutan setelah tahap sentrifugasi masih memiliki ukuran yang besar walaupun telah melalui proses penyayatan sehingga semakin tebal dan besar ukuran partikel seiring dengan semakin banyaknya massa karbon dari rGO yang digunakan maka probabilitas ukuran partikel yang tertembak selama proses pengukuran PSA berukuran di atas 100 nm yang merepresentasikan diameter penampang lapisan rGO semakin banyak. Selain itu, pekatnya konsentrasi larutan menyebabkan partikel beragglomerasi dengan cepat sehingga partikel-partikel yang saling beraglomerasi tersebut membentuk partikel dengan ukuran mikron. Hal ini mempengaruhi waktu

korelasi selama proses pengukuran PSA. Waktu korelasi sangat berkaitan erat dengan ukuran partikel yang dihasilkan. Ketika waktu korelasi yang dihasilkan besar maka menunjukkan bahwa partikel yang terdapat dalam larutan memiliki ukuran yang besar. Begitu juga, ketika waktu korelasi yang dihasilkan saat pengukuran cepat (kecil) maka menunjukkan bahwa partikel dalam larutan memiliki ukuran yang kecil. Prinsip *Dynamic Light Scattering* (DLS) yang digunakan dalam PSA, menyebabkan ketika partikel dikenai atau ditembakkan sinar berupa laser selama pengukuran maka intensitas sinar yang dihamburkan oleh partikel akan berfluktuasi dengan kecepatan yang bergantung pada pergerakan dan ukuran partikel dalam larutan tersebut. Berdasarkan pada teori gerak Brownian, ketika pergerakan partikel-partikel dalam volum larutan tersebut lambat, maka partikel dalam larutan tersebut dikatakan memiliki ukuran yang besar karena partikel-partikel besar akan mengalami pergerakan yang lebih lama daripada partikel berukuran kecil. Pada seluruh variasi sampel secara garis besar menghasilkan kurva waktu korelasi yang sangat berfluktuasi (tidak halus) disebabkan oleh tidak homogenya partikel dalam larutan.

Masuknya atom - atom Cl dengan konsentrasi 1M saat proses pengadukan yang dibantu dengan adanya temperatur tidak memberikan cukup energi untuk memecah energi ikatan antar lapisan dan merenggangkan lapisan rGO dengan jumlah partikel yang banyak akibat konsentrasi yang pekat. Sehingga saat proses penyayatan dengan energi getaran yang diberikan mengakibatkan tidak mampu memecah jarak antar lapisan yang telah merenggang akibat tersisipnya atom-atom Cl secara menyeluruh. Hal ini menghasilkan waktu korelasi sedikit lebih lama dibandingkan dengan konsentrasi rendah. Sehingga terdapat puncak pada daerah ukuran yang besar. Sedangkan pada konsentrasi rendah, tidak terlalu banyak jumlah partikel-partikel besar yang saling beraglomerasi melayang dan tersebar dalam larutan sehingga masuknya atom - atom Cl yang berikatan dengan atom karbon di antara lapisan rGO dapat merenggangkan jarak antar lapisan dan energi getaran yang diberikan selama proses penyayatan dengan ultrasonik membantu memutus ikatan antar lapisan rGO. Sehingga tersisa partikel-partikel berukuran kecil yang melayang dan tersebar di dalam larutan setelah mengalami proses sentrifugasi menggunakan *centrifuge*.



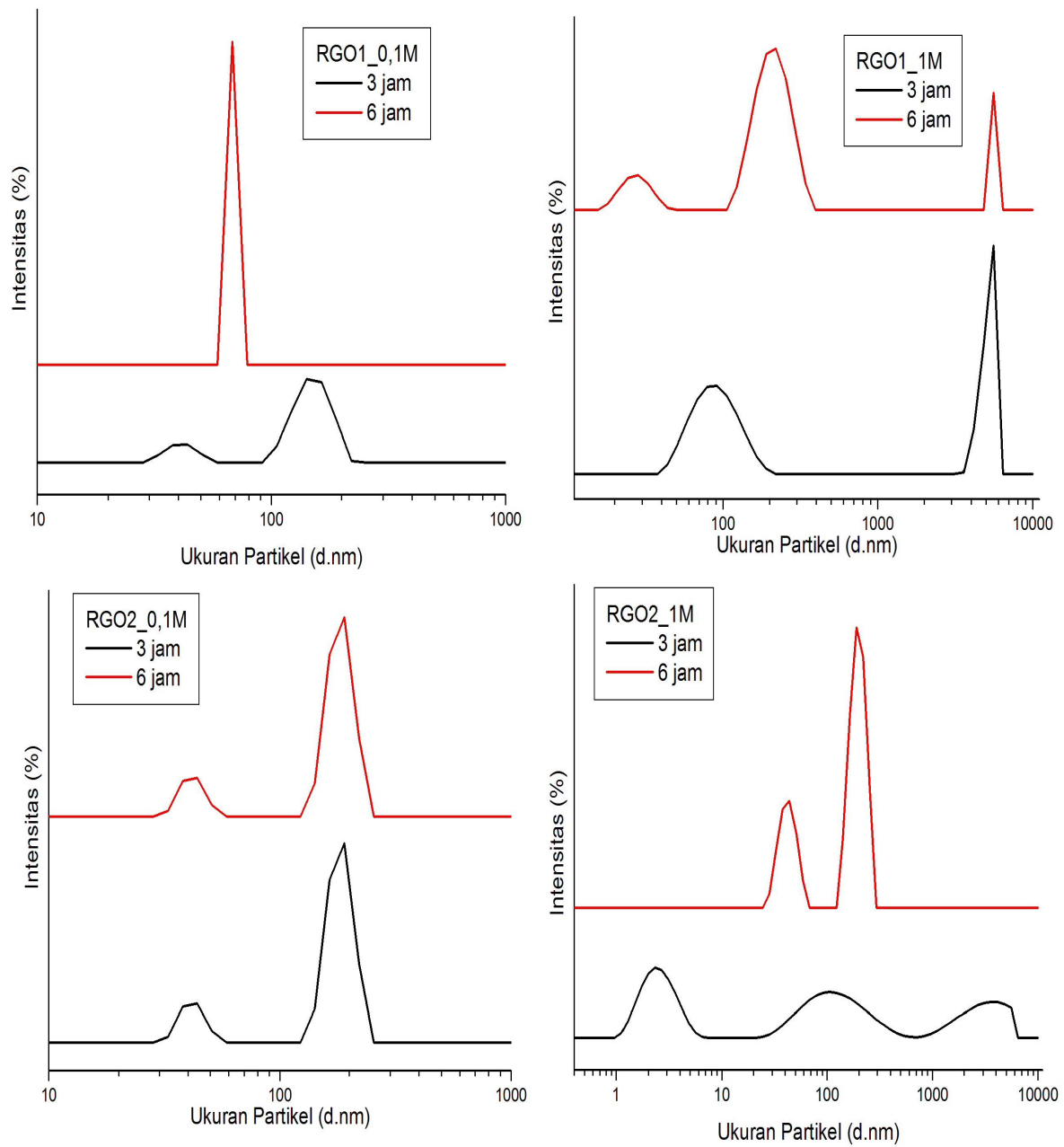
Gambar 4.4 Grafik distribusi ukuran partikel rGO dengan perbandingan molaritas 0,1M dan 1M

Sesuai pada Tabel 4.1, salah satu contoh ukuran partikel pada RGO1_1M_3 jam muncul puncak ke-3 pada nilai ukuran partikel sekitar 3,6 nm. Perbedaan partikel yang sangat jauh ukurannya dibandingkan dengan puncak ukuran partikel di daerah 100 nm merepresentasikan tebal lapisan rGO, dimana diketahui bahwa berdasarkan literatur jarak antar lapisan rGO umumnya dengan metode *Hummer* adalah sekitar 7 Å (Ciszewski,

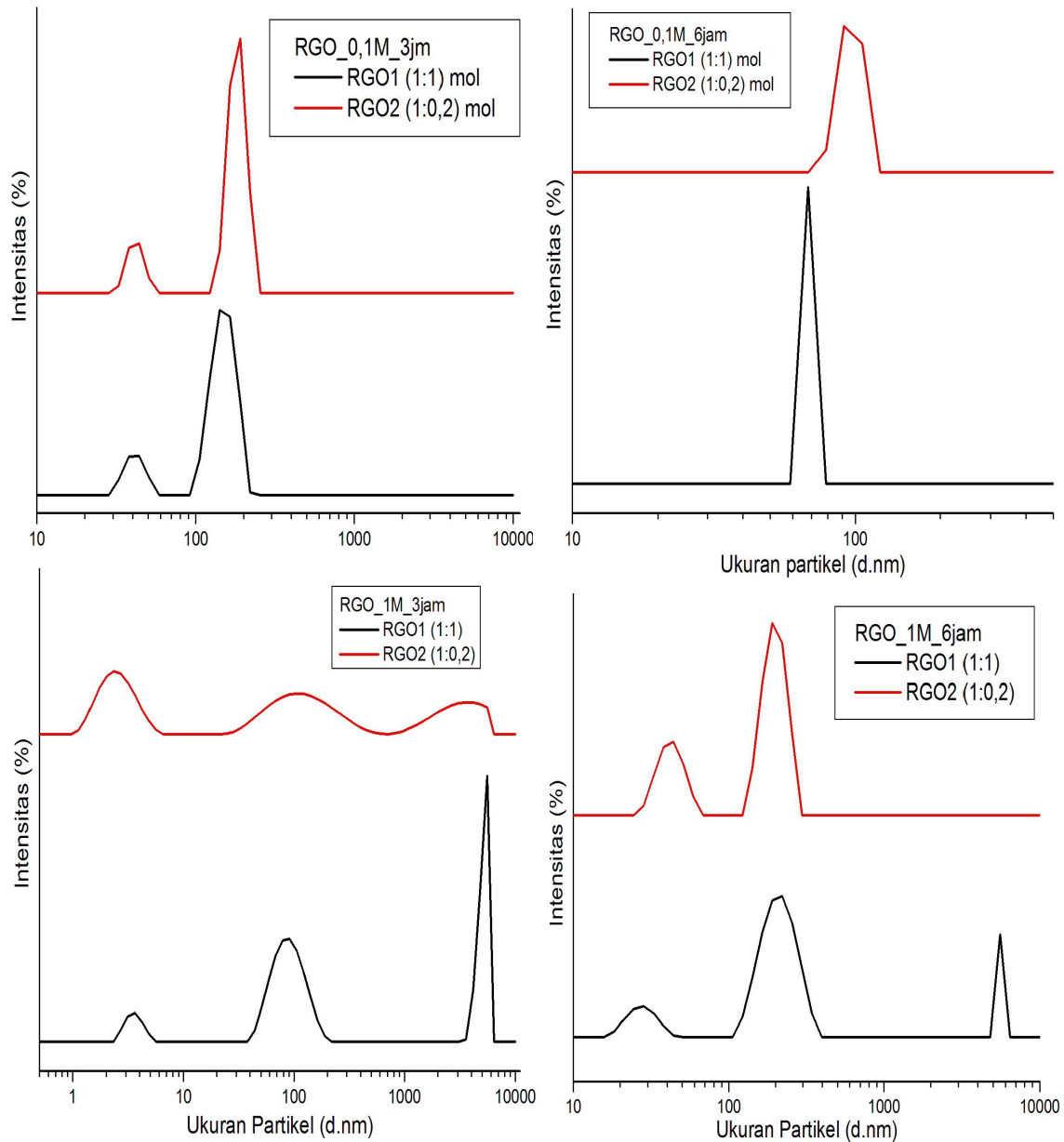
2013), maka dengan munculnya nilai ukuran partikel 3 nm menunjukkan struktur rGO variasi tersebut memiliki ketebalan lapisan 3,6 nm yang terdiri dari ~ 4 lapisan rGO. Sedangkan puncak ke-1 menghasilkan nilai ukuran partikel yaitu 92,2 nm dapat diindikasikan bahwa ukuran tersebut masih merepresentasikan diameter penampang rGO, begitu pula dengan puncak ke-2 yang muncul pada ukuran 5156 nm diindikasikan bahwa terdapat ukuran partikel yang masih berbentuk bongkahan partikel yang besar. Seluruh hasil ukuran partikel untuk variasi perbandingan molaritas terdapat pada Tabel 4.1.

Distribusi ukuran partikel dari seluruh variasi dalam larutan menunjukkan bahwa partikel-partikel memiliki struktur yang tidak homogen karena menghasilkan beberapa puncak ukuran partikel dalam satu kurva. Tidak homogennya ukuran partikel dalam larutan menyebabkan tingkat dispersitas yang sangat rendah. Hal ini ditunjukkan dengan nilai Pdi pada Tabel 4.1 yang tidak memenuhi kualitas syarat homogenitas partikel dalam larutan. Nilai Pdi sangat bergantung pada tingkat polidispersitas suatu larutan selama proses pengukuran PSA. Polidispersitas ini mempengaruhi kurva korelasi waktu saat partikel - partikel dikenai sinar laser yang ditunjukkan dengan munculnya beberapa puncak ukuran diameter partikel. Pada penelitian ini penggunaan larutan asam HCL dapat mereduksi ukuran ketebalan partikel tetapi belum dapat mendispersikan seluruh partikel - partikel dalam larutan.

Variasi waktu penyayatan selama 3 dan 6 jam yang dilakukan menggunakan ultrasonik menunjukkan bahwa semakin lama waktu penyayatan yang diberikan maka menghasilkan ukuran partikel dari rGO yang kecil. Hal ini dikarenakan energi getaran yang dihasilkan untuk memutus ikatan antar lapisan rGO yang telah merenggang menjadi semakin besar seiring dengan lebih lamanya waktu penyayatan yang diberikan. Sehingga energi getaran yang diberikan melalui medium air tersebut mampu memutus ikatan antar lapisan dan membuat ukuran partikel yang mencerminkan ketebalan lapisan rGO menjadi semakin tipis. Grafik hasil PSA untuk perbandingan waktu penyayatan ditunjukkan pada Gambar 4.5.



Gambar 4.5 Grafik distribusi ukuran dengan perbandingan waktu penyayatan selama 3 dan 6 jam



Gambar 4.6 Grafik distribusi ukuran dengan perbandingan mol senyawa HCl

Gambar 4.6 menunjukkan hasil pengukuran PSA dengan perbandingan mol antara senyawa HCl dan karbon. Dilakukan variasi perbandingan mol HCl dan karbon yaitu 1 : 1 dengan simbol RGO1 dan 1 : 0,2 mol dengan simbol RGO2 di mana 0,2 merupakan perbandingan mol milik karbon. Perbandingan mol ini diberikan untuk mengetahui pengaruh banyak sedikitnya atom - atom karbon yang diberikan dalam larutan yang nantinya akan disisipi atom-atom Cl. Perbedaan mol pada karbon mempengaruhi banyak

sedikitnya massa serbuk arang yang dicampurkan sehingga mempengaruhi pula banyak sedikitnya atom - atom karbon yang terdapat dalam larutan. Dengan menyisipnya atom - atom senyawa HCl di antara lapisan rGO maka akan membuat jarak antar lapisan semakin renggang sehingga dapat tersayat menjadi ukuran lapisan yang lebih tipis. Grafik PSA menunjukkan bahwa adanya perbandingan mol memberikan perubahan posisi puncak yang tidak terlalu signifikan dari hasil ukuran partikel yang dikarakterisasi. Terlihat bahwa bentuk dan posisi pola kurva puncak antar variasi hampir serupa satu sama lain. Perbedaan besar kecilnya molalitas hingga 10 kalinya hanya menyebabkan sedikit pengaruh terhadap perubahan ukuran partikel. Secara garis besar, pola kurva menunjukkan bahwa dengan perbandingan mol karbon yang lebih kecil daripada senyawa HCl menghasilkan pola kurva ukuran partikel yang lebih kecil. Hal ini dikarenakan mol karbon yang kecil menunjukkan bahwa jumlah atom - atom yang terdapat dalam larutan lebih kecil daripada atom - atom senyawa HCl. Seluruh hasil ukuran partikel untuk variasi perbandingan mol terdapat pada Tabel 4.1.

Tabel 4.1 Hasil ukuran partikel untuk variasi perbandingan molaritas

No	Nama Sampel	Ukuran Partikel		
		Puncak 1 (nm)	Puncak 2 (nm)	Puncak 3 (nm)
1.	RGO1_0,1M_3jam	150,2	41,3	-
2.	RGO1_1M_3jam	92,2	5156	3,6
3.	RGO2_0,1M_3jam	182,8	41,69	-
4.	RGO2_1M_3jam	139,0	2,6	3172
5.	RGO1_0,1M_6jam	68,0	-	-
6.	RGO1_1M_6jam	213,3	27,8	5560
7.	RGO2_0,1M_6jam	96,6	-	-
8.	RGO2_1M_6jam	197,6	42,4	-

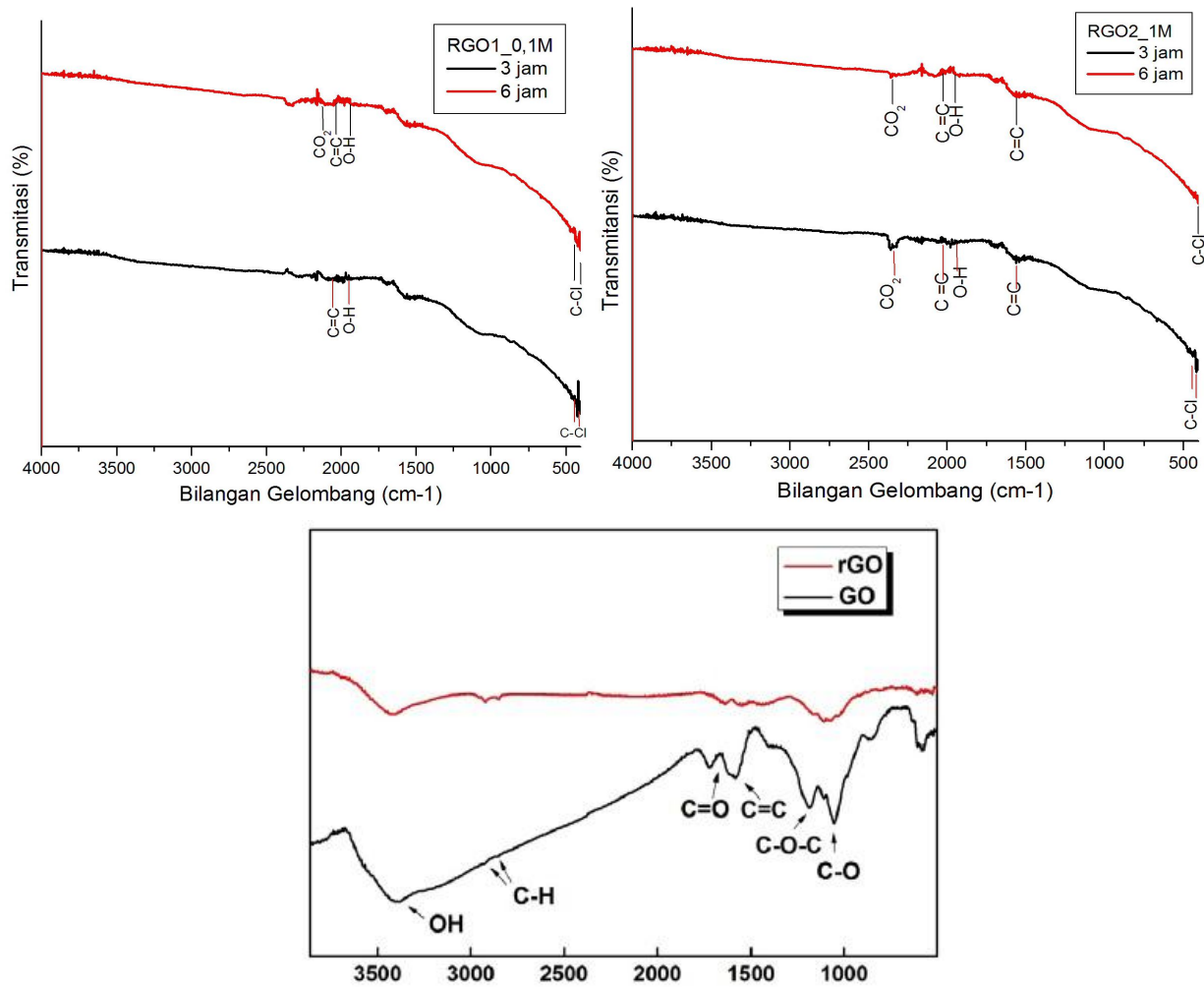
4.3 Hasil Analisis Ikatan Molekul rGO

Analisis ikatan molekul dari grafena oksida tereduksi (rGO) dapat dilakukan dengan karakterisasi *Fourier Transform Infra-Red* (FTIR). Ikatan - ikatan molekul yang muncul ditunjukkan dengan adanya puncak - puncak transmisi dari pola grafik FTIR. Masing - masing ikatan molekul memiliki bilangan gelombang yang berbeda didasarkan pada kemampuan ikatan molekul yang bergetar dan menyerap energi dari spektrum infra merah.

Hasil pola grafik FTIR dari seluruh variasi secara kualitatif ditunjukkan bahwa teridentifikasi ikatan-ikatan molekul utama yang dimiliki oleh rGO yaitu berupa ikatan C=C dan O-H. Kedua ikatan tersebut saling berikatan dan menyebabkan terbentuknya struktur heksagonal atom karbon yang tersusun menjadi lapisan rGO. Ikatan C=C menjadi struktur dasar dari rGO yang saling berikatan dan membentuk heksagonal dimana ikatan rangkap tersebut merupakan ikatan kovalen yang terbentuk dari hibridisasi sp^3 menjadi sp^2 dan sulit untuk terputus dikarenakan memiliki energi ikatan yang besar. Munculnya atom-atom oksigen dan hidrogen disebabkan adanya proses oksidasi selama pemanasan yang mengalami reduksi jumlah ikatan akibat adanya proses pencampuran dan penyayatan. Banyaknya ikatan - ikatan yang muncul pada penelitian sebelumnya (Gambar 2.7) menunjukkan masih banyaknya atom-atom oksigen dan hidrogen berikatan dengan atom karbon jika dibandingkan dengan hasil pola FTIR pada Gambar 4.7. Hal ini dikarenakan adanya proses pengadukan dalam waktu lama dengan penambahan suhu sehingga memberi tambahan energi lebih untuk dapat memutus energi ikatan dari gugus karboksil (C-O) dan hidroksil (O-H) (Zhang, 2013). Sehingga pada bilangan gelombang sekitar 3400 nm^{-1} tidak muncul gugus hidroksil (O-H) seperti pada Gambar 2.7.

Proses penambahan senyawa HCl dalam larutan bertujuan untuk menyisipkan atom - atom Cl agar berikatan dengan karbon pada ikatan lemah *Van der Waals* yang dimiliki oleh lapisan rGO, sehingga membuat jarak antar lapisan rGO menjadi lebih renggang dan mudah terputus ketika diberi energi dari luar berupa getaran selama proses penyayatan. Tersisipnya atom - atom Cl pada lapisan rGO ditunjukkan dengan munculnya puncak serapan inframerah pada bilangan gelombang sekitar 420 cm^{-1} yang merepresentasikan adanya ikatan C-Cl. Energi eksternal yang berasal dari penambahan suhu selama

pengadukan menambah energi untuk memutus ikatan senyawa HCl sehingga atom C yang memiliki elektron valensi dapat mengikat atom-atom Cl yang telah terlepas dari senyawa HCl. Kurva FTIR dari seluruh variasi yang diukur menunjukkan pola yang sama jika dibandingkan dengan kurva referensi FTIR yang dilakukan oleh *Konios* (2014), dimana reduksi yang dialami menyisakan beberapa ikatan gugus fungsi yaitu C=C dan O-H.



Gambar 4.7 Grafik FTIR (a,b) perbandingan konsentrasi rGO dan (c) rGO dengan proses eksfoliasi oleh *Konios* (2014)

4.4 Hasil Analisis Ukuran dan Bentuk Partikel rGO

Analisis ukuran radius dan bentuk suatu partikel (*form factor*) dapat diidentifikasi menggunakan karakterisasi Hamburan Sinar-X Sudut Kecil Sinkrotron (SAXS). SAXS menggunakan prinsip hamburan dari sumber berupa sinar-x berenergi tinggi yang mengenai suatu partikel dalam sampel kemudian hamburan terdeteksi pada detektor dengan jarak tertentu. Sinar-X yang digunakan diperoleh dari elektron - elektron yang ditembakkan dengan energi tinggi dan dipercepat karena adanya medan listrik.

Pada penelitian kali ini energi sinar-x yang digunakan pada karakterisasi SAXS sebesar 9 keV serta menggunakan dua macam panjang jarak sampel ke detektor (SDD) yaitu 800 cm dan 4300 cm. Pemilihan dua macam SDD dikarenakan agar dapat mencakup partikel - partikel berukuran besar dan kecil. Penggunaan SDD sangat berpengaruh selama proses pengukuran karena mempengaruhi sudut hamburan yang digunakan sehingga menentukan rentang vektor hamburan (q). Tinggi kecilnya rentang vektor hamburan sangat berhubungan dengan hasil ukuran partikel yang diperoleh. Ketika SDD yang digunakan panjang maka akan menghasilkan rentang q yang kecil ($<1\text{nm}^{-1}$), sehingga sesuai dengan persamaan 2.1, saat rentang q kecil akan merepresentasikan radius ukuran partikel yang besar. Sedangkan ketika digunakan SDD pendek maka akan menghasilkan q yang tinggi ($>1\text{nm}^{-1}$) sehingga merepresentasikan radius ukuran partikel yang kecil (*primary particle*).

Dari keseluruhan data, setelah dilakukan subtract background antara sampel dan *background* larutan serta *empty cell* mayoritas pola kurva yang dihasilkan memiliki intensitas cacahan hamburan partikel yang sangat rendah sehingga kurang membentuk sebuah pola kurva tertentu. Hal ini dapat disebabkan konsentrasi partikel dalam larutan yang diambil ke dalam *cell* saat pengukuran sangat rendah. Ketika dilakukan substrak dengan *background* larutan (baik *background* larutan air maupun larutan campuran air dengan HCl) dan *empty cell* maka hamburan sinar-X dari partikel yang tampak sama dengan hamburan dari larutan *background*. Sehingga hamburan x-ray yang diterima oleh detektor baik dengan SDD panjang maupun pendek menghasilkan cacahan intensitas yang rendah (persebaran rendah).

Terdapat beberapa *single data* yang dapat diolah dan berhasil dilakukan pencocokan kurva dengan model yang tersedia. Beberapa data kurva tidak dapat diolah karena persebaran intensitas hamburan yang terlalu lebar dan atau dikarenakan belum berhasilnya dilakukan pencocokan kurva hasil pengukuran dengan model yang tersedia. Beberapa data yang dapat dilakukan proses pencocokan untuk SDD 0,8m yaitu RGO1_1M_3jam_W, RGO1_0,1M_6jam_WH, RGO_0,1M_3jam_W, sedangkan untuk SDD 4,3m yaitu RGO1_1M_6jam_WH. Dimana W menunjukkan *background* larutan air dan WH menunjukkan *background* larutan air dan HCl serta 0,1M atau 1M menunjukkan konsentrasi larutan campuran HCl dan serbuk arang, 3 dan 6 jam menunjukkan lamanya waktu penyayatan.

Ketiga variasi larutan pada SDD 0,8 meter yaitu RGO1_1M_3jam_W, RGO1_0,1M_6jam_WH, RGO_0,1M_3jam_W dan larutan pada SDD 4.3 meter yaitu RGO1_1M_6jam_WH menunjukkan pola kurva landai dengan intensitas cacahan yang rendah akibat dari konsentrasi partikel yang terdapat dalam *cell* sangat rendah. Sedangkan pada RGO1_0,1M_3jam_WH memiliki intensitas cacahan hamburan sinar-x yang sangat tinggi sehingga berbeda dari hasil hamburan sampel variasi lainnya. Anomali yang dihasilkan dari RGO1_0,1M_3jam_WH dapat diketahui lebih lanjut melalui analisis pencocokan kurva menggunakan Sasfit.

Ukuran *radius gyration* (R_g) partikel serta bentuk partikel dapat diketahui secara kuantitatif melalui *fitting* kurva menggunakan program Sasfit. Proses ini bertujuan untuk mengetahui secara kuantitatif ukuran radius partikel dan bentuk dimensinya dengan cara mencocokkan kurva model yang dipilih dengan kurva hasil pengukuran. *Fitting* dilakukan dengan memilih model yang tepat sesuai dengan hipotesis awal bentuk partikel yang diukur. Dari seluruh jenis model yang ada pada Sasfit, digunakan beberapa jenis model yang dapat dicocokkan dengan kurva pengukuran yaitu model *Guinier* dan *Beaucage Exponential Power Law* (*BeaucageExPoLaw*).

Pemilihan model *Guinier* dikarenakan kurva model ini digunakan untuk mengidentifikasi ukuran partikel yang tidak beraturan dengan parameter α yang mencerminkan bentuk partikel tersebut. Pada umumnya saat melakukan analisis kuantitatif dari ukuran partikel dan bentuk, diawali dengan pemilihan model *Guinier*

karena dapat mencerminkan bentuk dari suatu partikel. Penggunaan model *Guinier* dikarenakan terindikasi bahwa bentuk partikel dari rGO adalah berupa bidang atau lapisan 2D dengan nilai $\alpha = 2$. Proses fitting pada model Guinier secara umum berdasarkan persamaan berikut :

$$I(q) = A \exp\left(-\frac{R_g^2 q^2}{3 - \alpha}\right) \dots\dots\dots 4.1$$

Dimana : 1 saat $\alpha = 0$ (untuk partikel berbentuk lingkaran)

$\alpha \pi q^{-\alpha}$ saat $\alpha = 1, 2$ (1 untuk partikel berbentuk batang panjang dan 2 untuk partikel berbentuk bidang atau lapisan 2D)

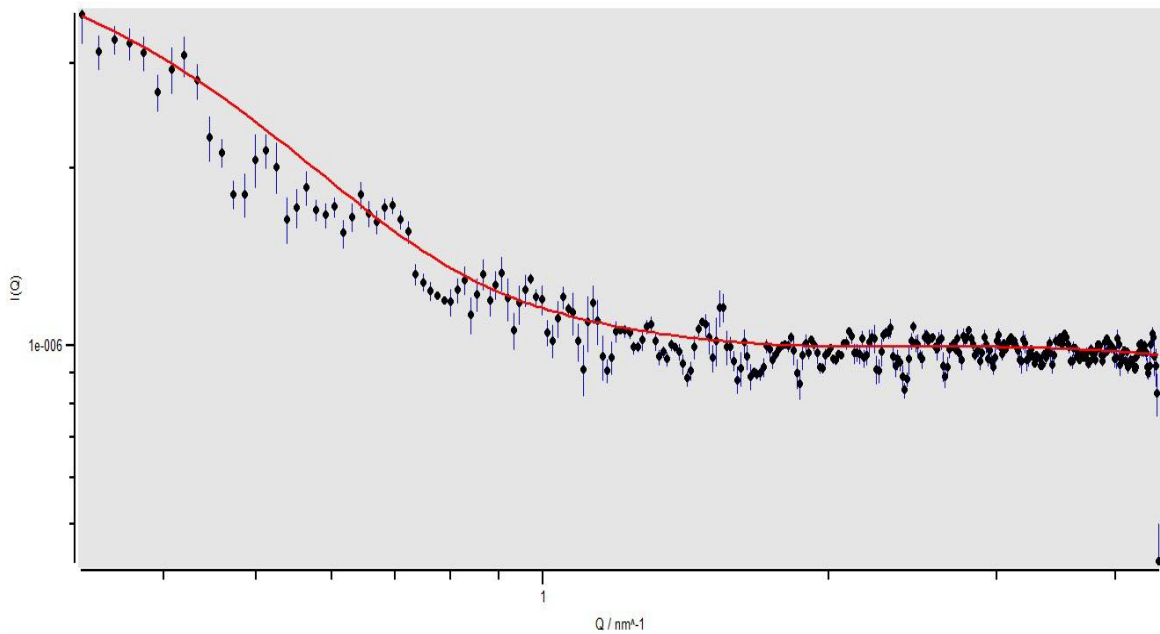
Pemilihan model *Beaucage ExPoLaw* dikarenakan terindikasi bahwa bentuk partikel yang dimiliki oleh model *Beaucage ExPoLaw* yang berupa material polimer dan misel (*micelles*) (sebuah material yang terbentuk dari molekul-molekul yang saling beragregasi didalam suatu larutan koloid) serupa dengan material rGO yang terbentuk dari material alam berupa arang tempurung kelapa tua dimana pada awalnya serbuk tempurung kelapa tersusun dari rantai selulosa, hemiselulosa dan lignin. Selain itu pada model *Beaucage ExPoLaw* partikel-partikel terdiri dari partikel utama (*primary particle*) yang berukuran sangat kecil dan partikel berukuran besar yang terbentuk dari agregasi partikel-partikel kecil. Proses *fitting* pada model Beaucage berdasarkan dengan persamaan berikut :

$$I_{Beaucage}(Q) \approx G \exp\left(-\frac{Q^2 R_g^2}{3}\right) + B \exp\left(-\frac{Q^2 R_{sub}^2}{3}\right) \left(\frac{[erf(QkR_g / \sqrt{6})]^3}{Q}\right)^P + Gs \exp\left(-\frac{Q^2 R_s^2}{3}\right) + Bs \left(\frac{[erf(Qk_s R_s / \sqrt{6})]^3}{Q}\right)^{Ps} \dots\dots\dots 4.2$$

Suku pertama dari persamaan 4.2 tersebut merupakan persamaan *Guinier*. Persamaan *Guinier* mencerminkan persamaan model untuk partikel poros, tidak beraturan dan berukuran besar yang berada pada rentang q kecil dimana memiliki parameter R_g . Suku kedua dari persamaan merupakan persamaan *BeaucageExPoLaw* yang terdiri dari persamaan untuk daerah rentang q tinggi yang memiliki parameter R_{sub} dan rentang q kecil yang memiliki parameter R_s . Suku ketiga dan keempat merupakan persamaan untuk

unit sub-struktural dari partikel yang terdiri parameter R_s . R_g merupakan radius dari partikel berukuran besar. R_{sub} merupakan radius dari gabungan beberapa partikel R_s yang berada pada rentang q tinggi. R_s merupakan radius partikel dengan ukuran terkecil (*primary particle*) (Kohlbrecher, 2011).

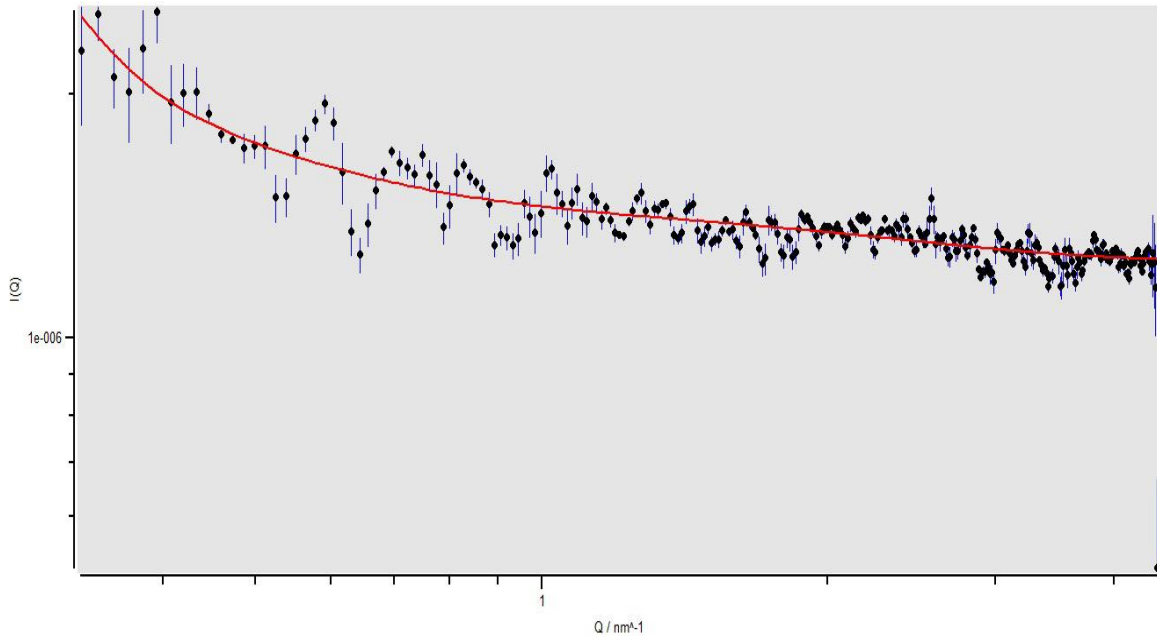
Proses pencocokan pertama dilakukan pada sampel RGO1_1M_3jam_W dengan SDD 0,8 meter yang menggunakan model *BeaucageExPoLaw*. Pencocokan dengan model *BeaucageExPoLaw* tersebut telah memenuhi seluruh persyaratan parameter yang dimiliki oleh model. Pencocokan model dan pengukuran menghasilkan nilai ukuran partikel rGO yaitu $R_g = 4,988$ nm, $R_{sub} = 1,418$ nm dan $R_s = 0,208$ nm ($\chi^2 = 6,085$). Radius R_g merupakan ukuran partikel hasil dari kumpulan partikel beradius R_{sub} dimana R_{sub} merupakan partikel yang tersusun dari partikel utama yaitu dengan radius R_s . Nilai radius yang dihasilkan bersesuaian dengan nilai ukuran partikel yang dihasilkan melalui pengukuran PSA pada sampel RGO1_1M_3jam. Dimana, dari hasil PSA muncul puncak kecil pada daerah ukuran partikel sangat kecil yaitu 3,6 nm yang mengindikasikan bahwa terdapat partikel di dalam larutan tersebut memiliki ukuran partikel rGO sekitar 3,6 nm. Sehingga hasil pencocokan model *BeaucageExPoLaw* yang mencerminkan partikel lingkaran dengan $R_g = 4,988$ mengindikasikan bahwa terdapat partikel rGO dengan ukuran sebesar 4,98 nm yang masih memiliki bentuk seperti bola 3D dalam ukuran kecil. Dilain sisi, bentuk partikel yang dihasilkan dari pencocokan menunjukkan bahwa partikel memiliki bentuk partikel yang kasar dan tersusun tidak teratur (*Mass Fractal*). Hal ini ditunjukkan oleh nilai P dari hasil pencocokan kurva yang mencerminkan bentuk suatu partikel dengan nilai $P = 1,93$ ($P < 3$) mencerminkan ketidak teraturan partikel tersebut. Dari hasil pencocokan dengan model *BeaucageExPoLaw* yang dihasilkan masih belum dapat diindikasikan bahwa ukuran tersebut merupakan ketebalan dari rGO yang memiliki dimensi bentuk menyerupai bidang lempengan 2D. Tetapi, dihasilkannya ukuran radius yang sangat kecil yaitu 4,988 nm menunjukkan bahwa penambahan HCl pada larutan serbuk arang dapat mereduksi ukuran partikel rGO sehingga diperoleh ukuran yang kecil. Dan munculnya kesesuaian hasil SAXS dengan ukuran PSA yang bernilai dibawah 10 nm jika dibandingkan dengan munculnya puncak dari PSA pada ukuran partikel antara 10 nm - 100 nm atau lebih (>100 nm) masih dimungkinkan terindikasi bahwa terdapat rGO dengan bentuk berupa beberapa lapisan tipis 2D.



Gambar 4.8 Kurva pencocokan pola hamburan vektor larutan RGO_1M_3jam_W pada SDD 0,8 m

Proses pencocokan kedua dilakukan pada sampel RGO1_0,1M_6jam_WH dengan SDD 0,8 meter yang menggunakan gabungan model *Guinier* dan *BeaucageExPoLaw*. Pencocokan dengan kedua model tersebut telah memenuhi seluruh persyaratan parameter yang dimiliki oleh kedua model. Pencocokan dari model *Guinier* dan pengukuran menghasilkan nilai ukuran partikel rGO $R_g = 0,551$ nm dan $\alpha = 3,57e-008 \approx 0$. Sedangkan dengan model *BeaucageExPoLaw* menghasilkan nilai ukuran radius partikel yaitu $R_g = 9,891$ nm, $R_{sub} = 2,002$ nm, $R_s = 0,766$ nm (chisqr = 4,964). Nilai α pada model *Guinier* yang mendekati sama dengan nol dan P pada model *BeaucageExPoLaw* yang bernilai 1,78 ($P < 3$), mencerminkan bahwa partikel rGO dalam larutan memiliki bentuk bola kasar (*Mass Fractal*) yang tersusun dari partikel-partikel utama yang acak satu sama lain. Nilai radius R_g yang dihasilkan dari hasil pencocokan model tidak bersesuaian dengan nilai ukuran partikel yang dihasilkan dari pengukuran PSA pada sampel RGO1_0,1M_6jam. Probabilitas terukurnya partikel berukuran kecil ini sangat kecil dibandingkan dengan jumlah partikel-partikel berukuran besar. Ukuran radius R_g yang dihasilkan dari pencocokan kurva model dengan data tidak muncul sebagai puncak dalam grafik PSA dan bernilai lebih kecil dari diameter partikel dari PSA. Hal ini dapat disebabkan karena kondisi sampel yang tidak stabil dalam dispersitas dan tidak homogen,

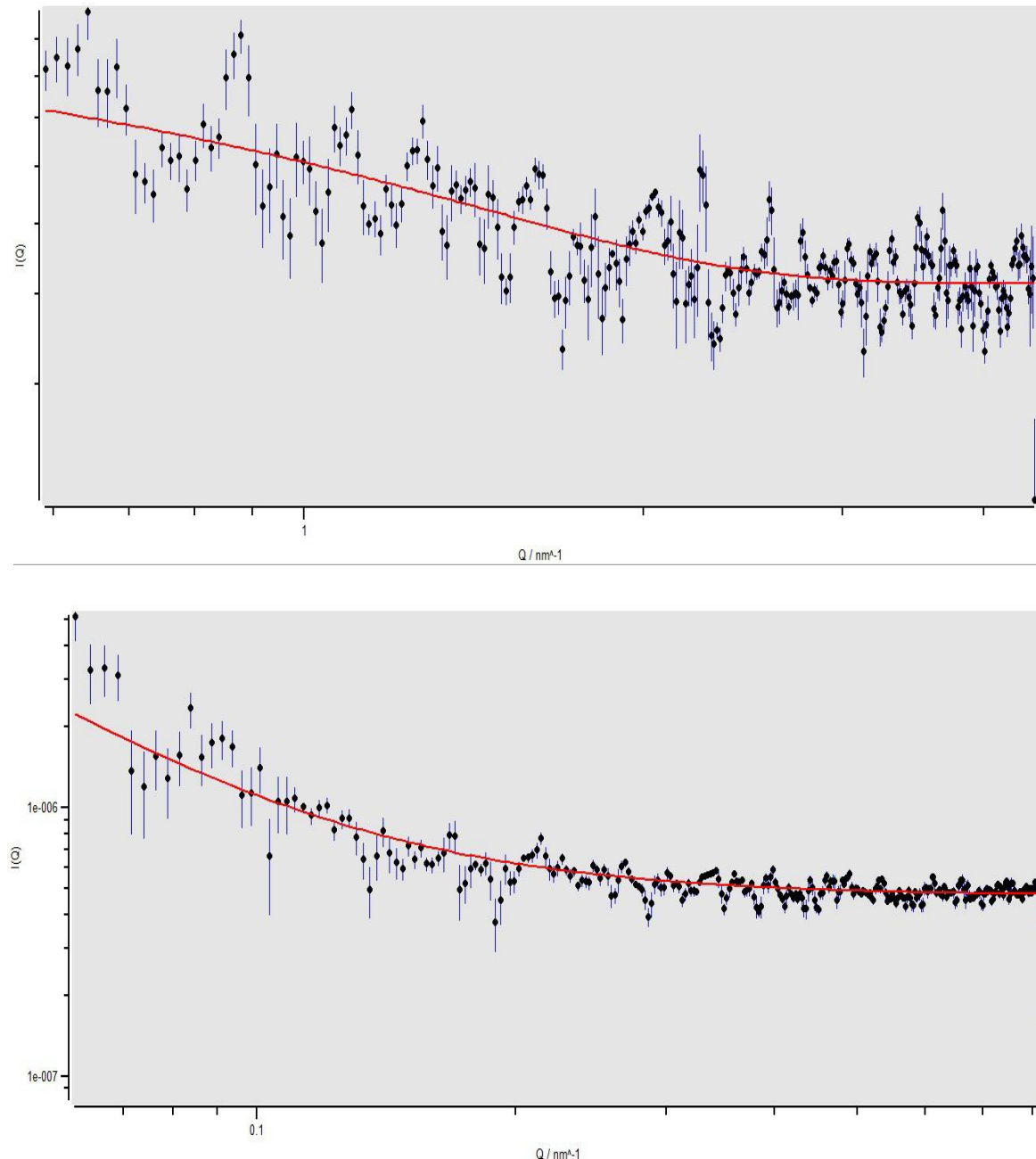
sehingga hasil ukuran partikel yang dihasilkan dari variasi larutan yang sama tersebut pasti tidak sama.



Gambar 4.9 Kurva pencocokan pola hamburan vektor larutan RGO_0,1M_6jam_WH pada SDD 0,8 m

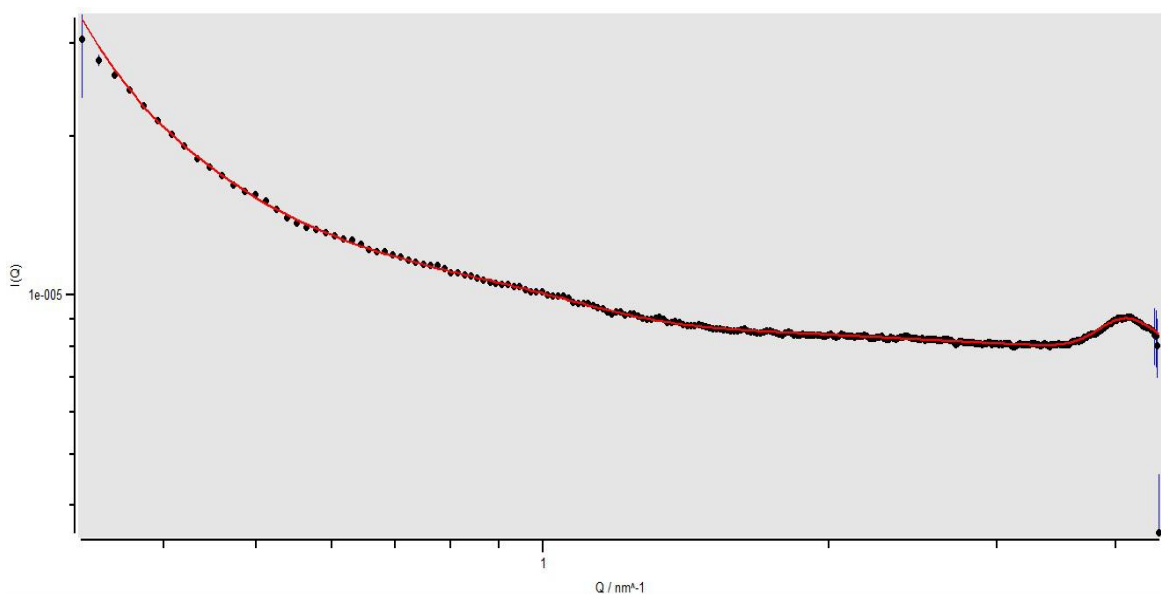
Proses pencocokan ketiga dan keempat dilakukan pada variasi sampel RGO1_0,1M_3jam_W dengan SDD 0,8 meter dan RGO1_1M_6jam_WH dengan SDD 4,3 meter menggunakan model *Guinier*. Pencocokan dengan model tersebut telah memenuhi seluruh persyaratan parameter yang dimiliki oleh model. Pencocokan dari model *Guinier* dan pengukuran menghasilkan nilai ukuran partikel untuk RGO1_0,1M_3jam_W dengan SDD 0,8 meter yaitu $R\alpha = 1,034$ nm dan $\alpha = 0,345$ (chisqr = 6,547) sedangkan untuk RGO1_1M_6jam_WH dengan SDD 4,3 meter yaitu $R\alpha = 1,242$ nm dan $\alpha = 2,059$ (chisqr = 3,376). Nilai α pada model *Guinier* dari RGO1_0,1M_3jam_W yang mendekati nol mencerminkan bahwa partikel rGO dalam larutan memiliki bentuk bongkahan partikel yang tebal menyerupai bola. Sedangkan Nilai α pada model *Guinier* dari RGO1_1M_6jam_WH yang bernilai 2,059 mencerminkan bahwa partikel rGO dalam larutan memiliki bentuk bidang lempengan dengan penampang datar seperti *disk*. Bentuk partikel berupa bidang lempengan 2D tersebut merepresentasikan beberapa lapisan rGO yang saling tersusun tidak teratur dengan ukuran ketebalan yang kecil (< 10 nm). Nilai radius $R\alpha$ yang dihasilkan dari hasil

pencocokan model kedua sampel tersebut tidak bersesuaian dengan nilai ukuran partikel yang dihasilkan dari pengukuran PSA pada sampel RGO1_1M_6jam, dimana hasil ukuran partikel dari PSA bernilai paling kecil yaitu berukuran 27,8 nm jika dibandingkan dengan hasil pencocokan model *Guinier* yang menghasilkan ukuran radius partikel yang kecil.



Gambar 4.10 Kurva pencocokan pola hamburan vektor larutan RGO_1M_3jam pada SDD 0,8 m dan RGO1_1M_6jam_WH pada SDD 4,3 m

Hasil pencocokan sementara menggunakan model Guinier dan BeaucageExPoLaw dengan data SAXS dari larutan RGO1_0,1M_3jam_WH dengan SDD 0,8 m menghasilkan nilai radius partikel sementara dari model guinier yaitu $R\alpha = 2,743$ nm dan $\alpha = 0,284$. Sedangkan dari pencocokan model BeaucageExPoLaw menghasilkan nilai radius yaitu $R_g = 5,744$ nm, $R_s = 3,458$ nm, $R_{sub} = 0,734$ nm (chisqr = 10,474). Sampel variasi tersebut masih membutuhkan proses pencocokan kurva model dengan data pengukuran SAXS dikarenakan masih memiliki nilai B_s dan P_s yang masih terlalu besar dan nilai P yang minus sehingga belum memenuhi syarat model BeaucageExPoLaw. Nilai B_s mencakup nilai tinggi rendahnya amplitudo dari suatu kurva SAXS sedangkan P_s merupakan nilai yang mencerminkan salah satu faktor bentuk partikel. Hal ini dapat disebabkan oleh persebaran cacahan hamburan yang tinggi dan berbeda jika dibandingkan dengan hasil kurva SAXS lain yang memiliki intensitas hamburan yang rendah, sehingga anomali ini dapat mempengaruhi hasil pencocokan antara kurva data dengan model. Perbedaan intensitas cacahan hamburan yang dihasilkan setelah substrak *background* dapat disebabkan karena proses substrak yang eror atau juga dikarenakan kondisi sampel saat pengukuran memiliki konsentrasi rendah dan tidak stabil sehingga mengakibatkan tidak sesuai hasil kurva dibandingkan dengan variasi lainnya. Yabel keseluruhan data radius partikel rGO ditampilkan pada Tabel 4.2



Gambar 4.11 Kurva pencocokan pola hamburan vektor larutan RGO_0,1M_3jam_WH pada SDD 0,8 m

Tabel 4.2 Hasil radius partikel dari variasi larutan rGO

No	Nama Sampel	BeaucageExPoLaw			Guinier
		R_g	R_{sub}	R_s	R_g
1.	RG01_1M_3jam_W_0,8m	4,988 nm	1,418 nm	0,208 nm	-
2.	RG01_0,1M_6jam_WH_0,8m	9,891 nm	2,002 nm	0,766 nm	0,551 nm
3.	RG01_0,1M_3jam_W_0,8m	-			1,034 nm
4.	RG01_1M_6jam_WH_4,3m	-			1,242 nm
5.	RG01_0,1M_3jam_WH	5,744 nm	0,734 nm	3,458 nm	2,743 nm

“ Halaman ini sengaja dikosongkan “

BAB 5

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Kesimpulan yang dapat diperoleh dari penelitian ini adalah :

- a. Proses pencampuran serbuk arang tempurung kelapa tua dengan HCl dalam larutan aquades dan proses penyayatan dapat mereduksi ukuran partikel rGO tetapi belum dapat mendispersikan serbuk arang secara sempurna sehingga partikel-partikel tidak homogen.
- b. Berdasarkan hasil PSA, adanya proses pencampuran HCl dan penyayatan secara garis besar telah berhasil menghasilkan tiga daerah puncak ukuran partikel yaitu ukuran partikel dibawah 10 nm, antara 10 - 100 nm dan diatas 100 nm tetapi dengan dispersitas dan tingkat homogenitas yang rendah.
- c. Berdasarkan hasil XRD, telah terbentuk fasa rGO pada sudut $2\theta = 24^\circ$ dengan bidang (002) dan terjadi reduksi puncak pada bidang (100) akibat pencampuran HCl dalam larutan.
- d. Proses pencampuran senyawa asam HCl dalam larutan telah membuat atom-atom Cl menyisi dan, berikatan dengan atom-atom karbon serta mengekskansi ikatan lemah antar lapisan rGO yang ditunjukkan dengan munculnya ikatan C-Cl pada kurva FTIR, sehingga memperlemah ikatan antar lapisan.
- e. Berdasarkan hasil pencocokan kurva SAXS dengan model *BeaucageExPoLaw* dan *Guinier* diperoleh bahwa partikel-partikel menghasilkan ukuran radius yang kecil ($<10\text{nm}$), tetapi secara garis besar masih merepresentasikan bentuk partikel berupa bongkahan bola kasar.

5.2 Saran

Saran yang dapat diberikan untuk penelitian selanjutnya adalah :

- a. Mendapatkan larutan rGO dengan konsentrasi tertentu dari arang tempurung kelapa tua yang dapat terdispersi sempurna dan memiliki ukuran partikel yang homogen sehingga dapat diketahui struktur ketebalan rGO yang telah tereduksi.

“ Halaman ini sengaja dikosongkan “

DAFTAR PUSTAKA

- Amemiya Y dan Shinohara Y. Small Angle X-Ray Scattering Basics and Applications. University of Tokyo (2010)
- Beaucage G et al. Particle Size Distribution from Small Angle Scattering using Global Scattering Functions. Applied Crystallography. Vol 37, 523-535 (2004)
- Britton D.T et al. Size Distribution and Surface Characteristics of Silicon Nanoparticles. Applied Crystallography. Vol 42, 448-456 (2009)
- Cattani M et al. SAXS Structural Characterization of Nanoheterogeneous Conducting Thin Films. A Brief Review of SAXS Theories. University of Sao Paulo
- Ciszewski M et al. Survey of Graphite Oxidation Methods Using Oxidizing Mixtures in Inorganic Acids. CHEMIK. 4, 67 (2013)
- Danilov M.O et al. Reduced Graphene Oxide : a Promising Electrode Material for Oxygen Electrodes. Journal of Nano Structure in Chemistry. 3, 49 (2013)
- Fu Changjing et al. Evaluation and Characterization of reduced Graphene Oxide Nanosheets as Anode Materials for Lithium-Ion Batteries. Int. J. Electrochem. Sci., 8 , 6269-6280 (2013)
- Hantel Morits Maximilian. Graphite Oxide and Graphene Oxide Based Electrode Materials for Electrochemical Double Layer Capacitor. Technische University of Munchen. 21212 (2013)
- Kehayias Christopher E. et al. Probe Microscopy and Electronic Transport Measurements in Reduced Graphene Oxide Chemical Sensors. Tufts University. 617, 627-5368 (2013)
- Kim Hyunwoo et al. Graphene/Polymer Nanocomposites. Macromolecules. Vol 43. 6515-6530 (2010)
- King Stephen M. Small Angle Neutron Scattering. Harwell Oxford (2013)
- Kohlbrecher, Joachim. Sasfit: A Program for Fitting Simple Structural Models to Small Angle Scattering Data. Paul Scherrer Institute. 2011

- Li Jianchang et al. The Preparation of Graphene Oxide and Its Derivatives and Their Application in Bio-Tribological Systems. *Lubricants* 2, 137-161 (2014)
- Loryuenyong Vorrada et al. Preparation and Characterization of Reduced Graphene Oxide Sheets via Water-Based Exfoliation and Reduction Methods. *Journal of Advances in Materials Science and Engineering*. 2013, 1-5 (2013)
- Nugraha Ananta I. Md. Characterization of Reduced Graphene Oxide (rGO) from Cocont Shell as Microwafe Absorbing Material. ITS (2015)
- Nugraheni Ananda Y. et.al. Study on Phase, Molecular Bonding and Bandgap of Reduced Graphene Oxide Prepared by Heating Coconut Shell. *Material Science Forum*. Vol 827 pp 285-289 (2014)
- Park Sungjin et al. Hydrazine-Reduction of Graphite and Graphene Oxide. Elsevier Ltd. 49, 3019-3023 (2011)
- Pei Songfeng et al. The reduction of graphene Oxide. Elsevier Ltd. 2011. (2011)
- Pinatik Herry, Tooy Dedie. Quality Analysis of Activated Coconut Shell Charcoal Briquette Dust in Water Purification at Various Water Source. ICAEME. Malaysia (2014)
- Pollard Benjamin. Growing Graphene via Chemical Vapor Depotition. Pomona College (2011)
- Prasetya Fandi A. Study of Raman Spectroscopy on Graphene Phase from Heat Treatment of Coconut (Cocus Nucifera) Shell. *Material Science Forum*. Vol 827, pp 290-293 (2014)
- Rao C.N et al. Synthesis, Graphene : Synthesis Properties and Phenomena, First Edition. Wiley-VCH GmbH & Co. KGzA (2013)
- Schaffel Franziska. The Atomic Structure of Graphene and Its Fews Layer Counterparts. University of Oxford. Elsevier Inc (2013)
- Scrafford K.M et al. Infrared Reduction of Graphene Oxide. University of Delaware. 2013

Yerizam Muhammad et al. Characteristics of Composite Rice Straw and Coconut Shell as Biomass Energy Resources (Briquette) (Case Study : Muara Telang Village, Banyasin of South Sumatra). Journal on Advance Science Engineering Information Technology. Vol 3 (2013)

Wachid Frischa M. et al. Synthesis of Nanocrystalline Graphite from Coconut Shell with Heating Process. AIP Conference Proceedings. 1586, 202-206 (2013)

Zhang Chen et al. Towards Low Temperature Thermal Exfoliation of Graphite Oxide for Graphene Production. Carbon. Vol 62, pp 11-24 (2013)

www.graphenea.com/pages/reduced-graphene-oxide#.Vmj8O3YrLIU.

<http://www.chemguide.co.uk/physical/energetics/bondenthalpies.html>

“ Halaman ini sengaja dikosongkan “

BIODATA PENULIS



Ananda Yogi Nugraheni yang akrab disapa “Yogi” merupakan penulis Thesis yang berjudul “Analisis Struktur Grafena Oksida Tereduksi dari tempurung Kelapa Tua dengan Hamburan Sinar-X Sudut Kecil Sinkrotron (SAXS)”.

Penulis merupakan anak kedua dari dua bersaudara yang lahir pada tanggal 26 Juni 1992 di Kota Surabaya. Penulis memulai pendidikannya di SDN Klampis Ngasem I, dilanjutkan dengan SMPN 19 Surabaya dan SMAN 14 Surabaya. Setelah lulus dari SMAN 14 Surabaya pada tahun 2010, penulis melanjutkan studinya di bidang material pada jurusan Fisika FMIPA ITS melalui jalur Kemitraan 2010.

Penulis aktif dalam dunia riset sejak didanainya proposal PKM oleh Dikti pada tahun 2012. Selain itu penulis pernah menjadi pemakalah dan mempublikasikan penelitiannya dalam Seminar Nasional Fisika (SNF) yang diadakan oleh Fisika LIPI. Serta pernah menulis paper dan mengikuti *conference* internasional di Bali pada tahun 2014. Penulis juga berpengalaman kerja praktek di Hanil Jaya Steel untuk menganalisis produksi baja ulir selama satu bulan. Penulis juga aktif dalam organisasi jurusan Fisika yaitu Himpunan Mahasiswa Fisika (HIMASIKA) ITS selama dua periode sebagai staff pada periode 2011-2012 dan sebagai sekertaris departemen perekonomian pada periode 2012-2013. Setelah lulus dari studi bidang material pada jurusan Fisika FMIPA ITS, penulis berencana akan tetap melanjutkan risetnya di perguruan tinggi tempat mengajar selanjutnya.

“ Halaman ini sengaja dikosongkan “